

# 基于多层石墨烯材料的光纤声波传感器

李晨, 陆雪琪, 庾财斌, 吴繁, 吴宇

电子科技大学信息与通信工程学院光纤传感与通信教育部重点实验室, 四川 成都 611731

**摘要** 研究了一种基于多层石墨烯材料的光纤声波传感器, 该传感器是由单模光纤和多层石墨烯薄膜构成的光纤法布里-珀罗干涉腔结构。分别采用多层的石墨烯和氧化石墨烯(GO)材料作为声压敏感薄膜, 进行声波传感实验研究。结果表明, 在音频范围内, 基于石墨烯和 GO 薄膜的光纤声波传感器的平均信噪比分别达到 56 dB 和 69 dB, 平均最小可探测声压灵敏度分别为  $20.8 \mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$  和  $6.63 \mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$ , 远低于电学声波传感器的最小可探测声压灵敏度。基于石墨烯材料的光纤声波传感器具有更高的声波检测灵敏度, 适用于强电磁干扰、狭小空间等环境下的微声压测量。

**关键词** 传感器; 多层石墨烯; 法布里-珀罗干涉腔; 光纤声波传感器; 灵敏度

中图分类号 TN253

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201838.0328017

## Fiber-Optic Acoustic Sensor Based on Multi-Layered Graphene Material

Li Chen<sup>1</sup>, Lu Xueqi, Yu Caibin, Wu Fan, Wu Yu

*Key Laboratory of Optical Fiber Sensing and Communications, Education Ministry of China,*

*School of Information and Communication Engineering,*

*University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu, Sichuan 611731, China*

**Abstract** A kind of fiber-optic acoustic sensor based on the multi-layered graphene material is studied, which has a Fabry-Perot interferometric cavity structure, consisting of single mode fibers and multi-layered graphene films. With the multi-layered pure graphene and multi-layered graphene oxide (GO) as the acoustic pressure sensitive film respectively, the experiments of acoustic wave sensing are conducted. The results indicate that, in the audio range, the average signal-to-noise ratios of the fiber-optic acoustic sensors based on multi-layered pure graphene and multi-layered GO films reach 56 dB and 69 dB, respectively. The sensitivities of the average minimum detectable acoustic pressure are  $20.8 \mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$  and  $6.63 \mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$ , respectively, far smaller than that of the electric acoustic sensor. The fiber-optic acoustic sensors based on the graphene material possess a high sensitivity, which is suitable for the micro-acoustic pressure measurement under the environment of severe electromagnetic interference and confined spaces.

**Key words** sensors; multi-layered graphene; Fabry-Perot interference cavity; fiber-optic acoustic sensor; sensitivity

**OCIS codes** 280.4788; 060.4510; 060.2370

## 1 引 言

石墨烯具有电导率大<sup>[1]</sup>、光子响应带宽大<sup>[2-3]</sup>及光学透明性优良等特点, 在新型光学和光电器件领域展现出良好的应用前景<sup>[4-5]</sup>。此外, 石墨烯材料具有优异的机械特性<sup>[6]</sup>, 其作为一种理想的振动薄膜材料, 在声压和振动检测方面具有得天独厚的优势, 它可以在极低的声压下提供大的振动位移, 由石墨

烯薄膜材料制成的发声器具有很宽的频率响应。近年来, 国内外报道了一系列石墨烯薄膜在扬声器、超声探测和超敏麦克风等方面的应用成果。而氧化石墨烯(GO)作为石墨烯的一类重要衍生物, 其结构与石墨烯类似, 同样具有良好的机械特性, 也可以作为一种理想的振动薄膜材料, 其制备工艺比石墨烯更加简便, 溶液法制备的 GO 薄膜的机械模量在 6~42 GPa 之间, 极限强度为 100~132 MPa。

收稿日期: 2017-11-01; 收到修改稿日期: 2017-12-27

基金项目: 国家自然科学基金(61475032)

作者简介: 李晨(1992—), 女, 硕士研究生, 主要从事石墨烯材料光纤微腔传感器方面的研究。

E-mail: 294341163@qq.com

导师简介: 吴宇(1980—), 男, 博士, 副教授, 主要从事新型微纳光纤器件、光纤传感系统应用方面的研究。

E-mail: wuyuzju@163.com

石墨烯是传感器件的热门材料,石墨烯材料的应用为实现传感器的高灵敏、智能化、集成化奠定了基础<sup>[7]</sup>。各种基于石墨烯传感器的应用已经成为研究热点。Ma 等<sup>[8]</sup>将石墨烯覆盖在光纤-毛细管结构的光纤端面,形成法布里-珀罗(F-P)腔式的压力传感器。利用石墨烯的大热导率<sup>[9]</sup>及高灵敏的温度响应特性<sup>[10]</sup>,可制成一种基于石墨烯的光纤温度传感器<sup>[11-12]</sup>。郭波等<sup>[13]</sup>提出了一种基于石墨烯三元复合材料的波长双光子激光器。

光纤声波传感器是一种新型的声信号测量手段。通过检测光纤中受声压调制光信号实现声波的测量。与传统的电学声波传感器相比,光纤传感技术具有无源、灵敏度高、体积小、不受电磁干扰等优点<sup>[14-15]</sup>,在工业控制、生物医学、国防军事以及航空海洋等领域得到了广泛的应用<sup>[15-16]</sup>。

本文研制了一种基于多层石墨烯材料的光纤法布里-珀罗干涉腔声波传感器<sup>[17]</sup>。将多层石墨烯和GO两种材料分别作为声压敏感薄膜,制作了光纤干涉型声波传感器,测试和分析了这两种传感器的灵敏度,并且与传统的柱极式电学声波传感器进行了比较,结果表明,基于石墨烯材料的光纤声波传感器具有更高的检测灵敏度和更大的响应带宽,在声学检测领域有着广阔的应用前景。

## 2 光纤声波传感器的结构及制作工艺

基于多层石墨烯材料的光纤声波传感器如图1所示。光纤干涉腔由单模光纤(SMF)端面和石墨烯薄膜组成。根据F-P干涉腔双光束干涉理论,该光纤干涉结构的反射光谱有如下表达式

$$I(\lambda) = I_{GM}(\lambda) + I_{FRE}(\lambda) + 2\sqrt{I_{GM}(\lambda) \times I_{FRE}(\lambda)} \cos\left(\frac{4\pi L}{\lambda}\right), \quad (1)$$

式中  $I_{GM}(\lambda)$  为薄膜的反射强度,  $I_{FRE}(\lambda)$  为 SMF 端面的反射强度,这两个物理量都仅与入射波长  $\lambda$  相关,可以近似为常量;  $L$  为腔长。当声压作用于振动薄膜上时,薄膜产生机械运动,通过改变 F-P 腔的腔长,使干涉条纹发生移动,由(1)式可以得出,当薄膜的反射率等于光纤端面的反射率时,干涉条纹的消光比达到最大值。

通过调整光纤端面与振动薄膜之间的距离,使得干涉条纹获得理想的对比度,如图2所示。实验获得的基于石墨烯薄膜材料的 F-P 干涉腔的条纹对比度可约为 30 dB,这为实现高灵敏度的声波信号检测提供了可能。

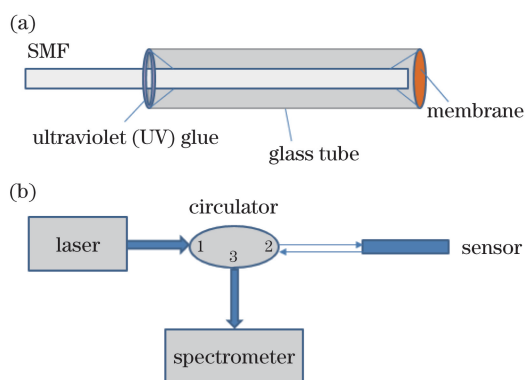


图1 (a)传感器的结构图;(b)传感器接入光谱仪的原理图  
Fig. 1 (a) Structural diagram of sensor;  
(b) schematic of sensor linked to spectrometer

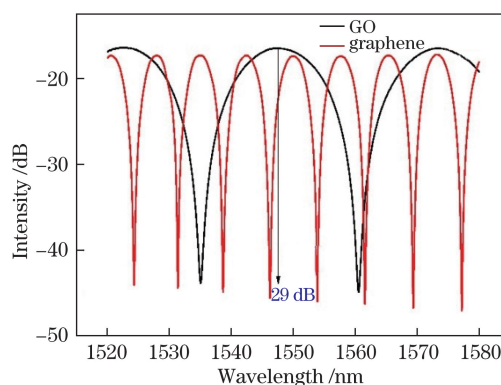


图2 光纤声波传感器的干涉光谱

Fig. 2 Interference spectrum of fiber-optic acoustic sensor

为了分析不同的石墨烯材料作为声敏薄膜时的响应特性,分别选用了多层石墨烯和多层GO作为声压敏感薄膜进行实验。采用多层GO作为声压敏感薄膜时,首先将GO粉末溶解在去离子水中,然后置于超声波清洗器中进行超声搅拌,得到质量浓度分别为50,100,150  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的GO分散液,并测得这三种不同质量浓度的GO膜样品的平均厚度分别为113,253,342 nm。结果表明,GO膜的厚度可以随GO溶液质量浓度的减小而减小,但是由小质量浓度GO溶液制成的GO膜在转移过程中更容易破裂,因此实验中选择最小质量浓度为50  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的GO分散液。用移液管将0.25 mL的GO溶液滴在铜(Cu)箔上,然后通过加热板将GO溶液烘干,使GO在Cu箔的表面形成薄膜<sup>[18-20]</sup>。

实验中使用的多层石墨烯薄膜是通过化学气相沉积(CVD)法<sup>[21]</sup>在铜箔上生成的,其厚度为10~20 nm。完成多层GO和石墨烯薄膜的制备后,分别将覆有石墨烯和GO薄膜的铜箔切割成小片,浸入质量浓度为0.2  $\text{g} \cdot \text{mL}^{-1}$ 的氯化铁( $\text{FeCl}_3$ )溶液中进行蚀刻。待铜箔腐蚀完全后,将薄膜置于去离子

水中清洗。

基于多层石墨烯的光纤声波传感器的制作过程如图 3 所示。在玻璃管的一端面涂抹一层薄薄的紫外胶,然后将玻璃管缓慢向下移动至浮动的薄膜,直到薄膜覆盖在玻璃管的端面,待水份蒸发后,用紫外灯照射贴有薄膜的玻璃管使紫外胶固化,玻璃毛细管端面成功转移石墨烯薄膜后的照片如图 4 所示。这里采用喇叭口的玻璃毛细管以增加薄膜的直径,从而提高声压响应的灵敏度。

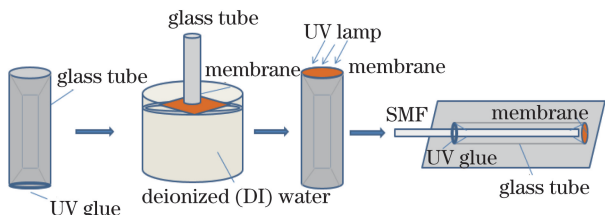


图 3 F-P 腔光纤声波传感器的制作流程

Fig. 3 Fabrication process of fiber-optic acoustic sensor with F-P cavity

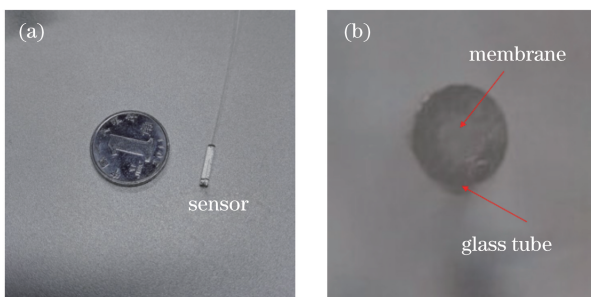


图 4 (a)传感器实物图;(b)毛细管端面的薄膜照片

Fig. 4 (a) Photo of sensor; (b) photo of film on capillary surface

### 3 实验装置与结果分析

为了研究两种 F-P 腔光纤声波传感器的性能,搭建了声波传感测试系统,为减少探测过程中外界噪声对实验系统的干扰,将测试系统置于恒温消音室内。实验系统如图 5 所示。采用中心波长为 1550 nm 的窄线宽激光器作为光源,从光纤声波探头反射回来的光经环形器后进入光电探测器(PD),检测到的电压信号由数据采集(DAQ)卡发送到计算机(PC)。为了分析不同薄膜的光纤声波传感器对声压的响应性能,采用灵敏度为  $62.4 \mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$  的电学声波传感器作为参考,将光纤声波传感器与电学声波传感器置于相同的声场环境中。

当声频在 1~20 kHz 的范围内变化时,测量光纤麦克风探测系统中两种薄膜光纤声波传感器的信噪比(SNR)与最小探测声压(MDP)。参考电学声

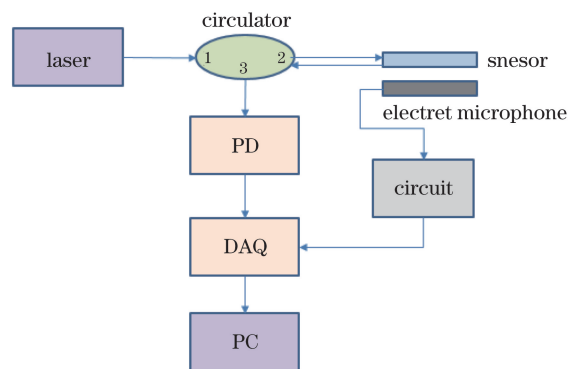


图 5 光纤麦克风探测系统的实验装置

Fig. 5 Experimental setup of fiber-optic microphone detection system

波传感器在 1~20 kHz 范围内具有平坦的频率响应,扬声器产生的声压随频率的变化而发生增大或衰减,通过测量参考电学声波传感器在不同频率下的声压输出,可以得到实际的声压大小。

当声波频率为 10 kHz 时,基于多层石墨烯和质量浓度为  $50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  的多层 GO 的光纤声波传感器的幅度频谱图分别如图 6(a)、(b)所示。可以看到,信噪比分别为 66.5 dB 和 73.1 dB,对应的探测声压灵敏度分别为  $6.7 \mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$  和  $3.0 \mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$ 。

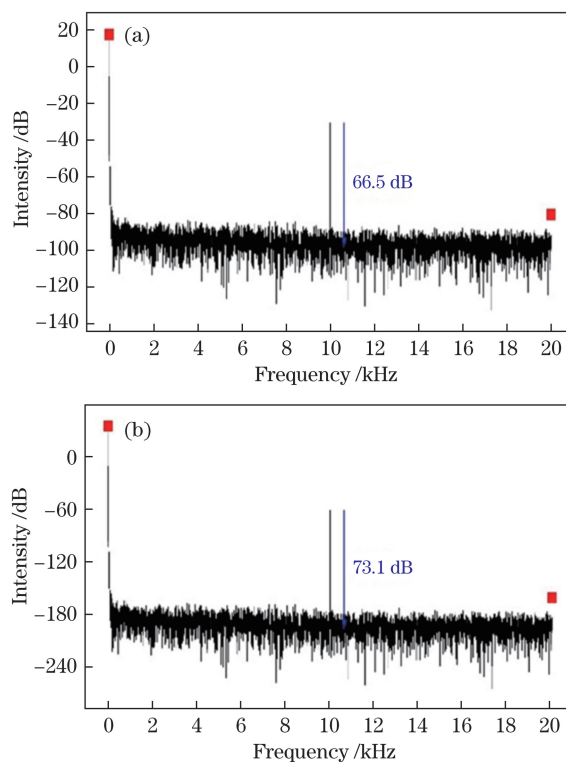


图 6 10 kHz 下基于(a)石墨烯膜和

(b) GO 膜的光纤声波传感器的幅度频谱

Fig. 6 Amplitude spectra of fiber-optic acoustic sensors at 10 kHz based on (a) graphene film and (b) GO film, respectively

基于多层石墨烯、三种不同质量浓度的多层 GO 薄膜的光纤声波传感器和电学声波传感器的声压响应信噪比如图 7 所示。可以看出,当光纤声波探测系统频率在 1~20 kHz 范围内,多层石墨烯和质量浓度分别为 50,100,150 mg·L<sup>-1</sup> 的多层 GO 薄膜的光纤声波传感器的平均信噪比分别为 56, 69, 67, 65.5 dB,比传统的柱极式电学声波传感器的平均信噪比(51 dB)分别大 5,18,16,14.5 dB。实验结果表明,在 1~20 kHz 的范围内,基于石墨烯材料的光纤声波传感器比电学声波传感器具有更大的信噪比。

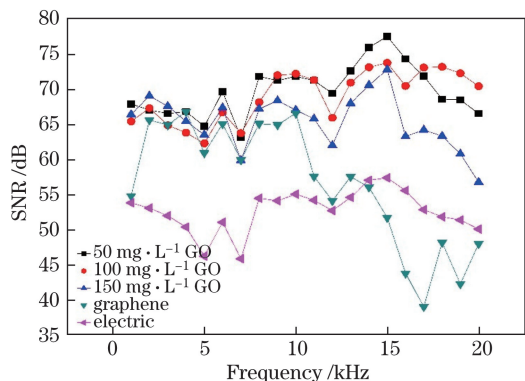


图 7 1~20 kHz 范围内的 SNR

Fig. 7 SNR in range of 1-20 kHz

基于多层石墨烯、多层 GO 薄膜的光纤声波传感器和传统的电学声波传感器的灵敏度测试结果如图 8 所示。可以看出,当光纤声波探测系统频率在 1~20 kHz 范围内时,多层纯石墨烯和质量浓度分别为 50,100,150 mg·L<sup>-1</sup> 的多层 GO 薄膜的光纤声波传感器的平均最小可探测声压灵敏度分别为 20.8, 6.63, 7.35, 10.91  $\mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$ ,而传统的电学声波传感器的最小探测声压灵敏度为 62.4  $\mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$ 。实验结果表明,基于多层石墨烯的光纤声波传感器比电学声波传感器具有更小的探测声压和更高的灵敏度,但基于多层石墨烯的光纤声波传感器在高频率段的信噪比减小幅度较大,信噪比较小,因此不适用于高频谱范围的声压测量。这是由于采用化学气相沉积法制备的石墨烯薄膜厚度仅为 10~20 nm,其较大的硬度和过小的厚度使得其在高频声压作用下的响应性能降低。另外,石墨烯膜需要以聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)作为转移过程中的基底材料,去除 PMMA 会增加石墨烯破裂的风险,这也降低了利用石墨烯薄膜制光纤 F-P 腔的成功率,同时也制约了传感器探测灵敏度的提升<sup>[22]</sup>。基于多层 GO 薄膜 F-P 腔的光纤声波传感器在各频率段的性能均比较稳定,且 GO 溶液的质量浓度越小,GO 膜的

厚度越小,可以探测到更小的声压变化,具有更高的灵敏度。因此,通过优化制备工艺,获得更薄和更大面积的 GO 膜,从而提高探测灵敏度。基于多层 GO 的声波传感器在较高的声波频率范围内具有高灵敏度的响应能力,其可以被应用于超声波的检测领域。

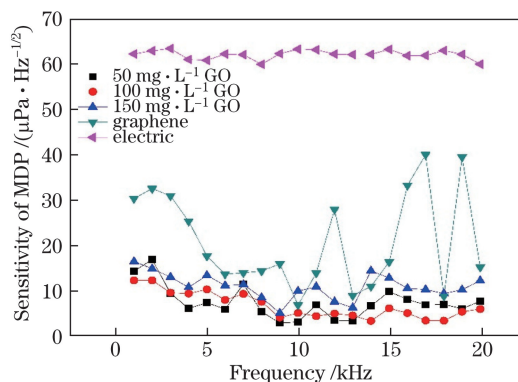


图 8 1~20 kHz 范围内的 MDP 灵敏度

Fig. 8 Sensitivity of MDP in range of 1-20 kHz

对上述多层石墨烯和多层 GO 薄膜的光纤声波传感器分别进行了重复性测量,灵敏度测试结果如图 9 所示。可以看出,多层石墨烯薄膜和多层 GO 薄膜的光纤声波传感器在光纤声波探测系统中的灵敏度标准偏差分别为 0.27, 0.17, 0.23, 0.29  $\mu\text{Pa}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$ ,灵敏度变化的误差波动范围较小,表明单个多层石墨烯光纤声波传感器具有较好的稳定性、一致性和可重复性。

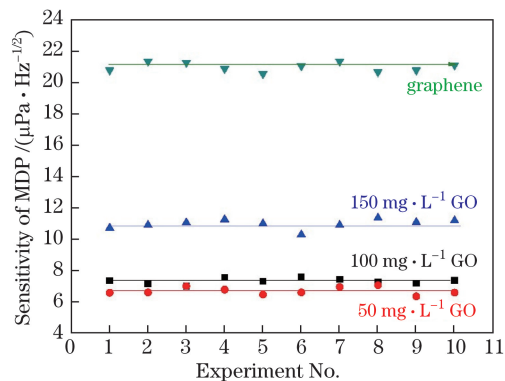


图 9 重复 10 次测得的 MDP 灵敏度

Fig. 9 Sensitivity of MDP obtained after a repeat of 10 times

## 4 结 论

研制了一种基于多层石墨烯材料的光纤声波传感器。与电学声波传感器对比,发现基于石墨烯材料的光纤声波传感器在声压检测中具有更高的灵敏度和更大的响应带宽,同时,光纤声波传感器可以工作于电学声波传感器无法工作的强电磁干扰等恶劣环境下,因此在无源侦听、管道泄漏检测、工业探伤

等领域具有广阔的应用前景。然而,由于光纤声波传感器制备工艺比较复杂,薄膜转移过程中的不可控性降低了基于石墨烯薄膜制备光纤声波传感器结构的成功率。此外,GO分散液在铜箔表面形成的薄膜厚度不均匀,这使得由同一薄膜制备的多个声波传感器的性能存在较大的差异,因此该传感器结构的制备工艺还须进一步优化。

## 参 考 文 献

- [1] Li X L, Zhang G Y, Bai X D, *et al.* Highly conducting graphene sheets and Langmuir-Blodgett films[J]. *Nature Nanotechnology*, 2008, 3(9): 538-542.
- [2] Xia F N, Mueller T, Lin Y M, *et al.* Ultrafast graphene photodetector[J]. *Nature Nanotechnology*, 2009, 4(12): 839-843.
- [3] Bi W H, Ma J Y, Yang K L, *et al.* Graphene-based optical fiber and its applications[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2017, 54(4): 040002.  
毕卫红, 马敬云, 杨凯丽, 等. 石墨烯光纤及其应用[J]. *激光与光电子进展*, 2017, 54(4): 040002.
- [4] Li S J, Gan S, Mu H R, *et al.* Research progress in graphene use in photonic and optoelectronic devices[J]. *New Carbon Materials*, 2014, 29(5): 329-356.  
李绍娟, 甘胜, 沐浩然, 等. 石墨烯光电子器件的应用研究进展[J]. *新型炭材料*, 2014, 29(5): 329-356.
- [5] Lee C G, Wei X D, Kysar J W, *et al.* Measurement of the elastic properties and intrinsic strength of monolayer graphene[J]. *Science*, 2008, 321(5887): 385-388.
- [6] Sasha S, Dmitriy A, Richard D, *et al.* Synthesis of graphene-based nanosheets via chemical reduction of exfoliated graphite oxide[J]. *Carbon*, 2007, 45(7): 1558-1565.
- [7] Zhou C, Chen S H, Lou J Z, *et al.* Recent development on graphene-based sensors[J]. *Materials Review*, 2014, 1: 15-20.  
周超, 陈思浩, 楼建中, 等. 石墨烯在传感器中的应用研究进展[J]. *材料导报*, 2014, 1: 15-20.
- [8] Ma J, Jin W, Ho H L, *et al.* High-sensitivity fiber-tip pressure sensor with graphene diaphragm[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(13): 2493-2495.
- [9] Balandin A A, Ghosh S, Bao W, *et al.* Superior thermal conductivity of single-layer graphene[J]. *Nano Letters*, 2008, 8(3): 902-907.
- [10] Calizo I, Ghosh S, Miao F, *et al.* Raman nanometrology of graphene: Temperature and substrate effects[J]. *Solid State Communications*, 2009, 149(27/28): 1132-1135.
- [11] Xiao Y, Zhang J, Cai X, *et al.* Fiber-optic humidity sensing based on graphene[J]. *Acta Optica Sinica*, 2015, 35(4): 0406005.
- [12] Liao G Z, Zhang J, Cai X, *et al.* All-fiber temperature sensor based on graphene[J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, 33(7): 0706004.  
廖国珍, 张军, 蔡祥, 等. 基于石墨烯的全光纤温度传感器的研究[J]. *光学学报*, 2013, 33(7): 0706004.
- [13] Guo B, Ouyang Q Y, Li S, *et al.* Dual-wavelength soliton laser based on graphene ternary composite[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(7): 0703012.  
郭波, 欧阳秋云, 李施, 等. 基于石墨烯三元复合材料的双波长孤子激光器[J]. *中国激光*, 2017, 44(7): 0703012.
- [14] Yi X S, Wu X. Sound transmission technology of fiber microphone[J]. *Police Technology*, 2004, 6: 3-5.  
伊小素, 吴先. 光纤麦克风传声技术[J]. *警察技术*, 2004, 6: 3-5.
- [15] Du J. Design and implementation of fiber-optic probe for fiber optic microphone detection system[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China, 2015.  
杜江. 用于光纤麦克风探测系统的光纤探头设计与实现[D]. 成都: 电子科技大学, 2015.
- [16] Bilaniuk N. Optical microphone transduction techniques[J]. *Applied Acoustics*, 1997, 50(1): 35-63.
- [17] Zhu J L, Wang M, Cai D Y, *et al.* A fiber Fabry-Perot micro pressure sensor[J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(4): 0428002.  
朱佳利, 王鸣, 蔡东艳, 等. 光纤法布里-珀罗微压传感器[J]. *光学学报*, 2014, 34(4): 0428002.
- [18] Wu Y, Yu C B, Wu F, *et al.* A highly sensitive fiber-optic microphone based on graphene oxide membrane[J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2017, 35(19): 4344.
- [19] Yu C B, Wu Y, Liu X L, *et al.* Graphene oxide deposited microfiber knot resonator for gas sensing[J]. *Optical Materials Express*, 2016, 6(3): 727.
- [20] Yu C B, Wu Y, Liu X L, *et al.* Miniature fiber-optic NH<sub>3</sub> gas sensor based on Pt nanoparticle-incorporated graphene oxide[J]. *Sensors & Actuators B: Chemical*, 2017, 244: 107-113.
- [21] Ren W C, Gao L B, Ma L P, *et al.* Preparation of graphene by chemical vapor deposition[J]. *New Carbon Materials*, 2011, 26(1): 71-80.  
任文才, 高力波, 马来鹏, 等. 石墨烯的化学气相沉积法制备[J]. *新型炭材料*, 2011, 26(1): 71-80.
- [22] Li C, Gao X Y, Guo T T, *et al.* Analyzing the applicability of miniature ultra-high sensitivity Fabry-Perot acoustic sensor using a nanothick graphene diaphragm[J]. *Measurement Science & Technology*, 2015, 26(8): 085101.