

doi: 10.3788/gzxb20174608.0811002

基于泛频振动的石英增强光声光谱测声器优化设计

马英^{1,3}, 余亮^{2,3}, 郑华丹^{3,4}, 刘群¹, 丘丹圭¹, 侯建荣¹, 尹王保^{3,4}, 董磊^{3,4}

(1 中国辐射防护研究院, 太原 030006)

(2 新乡市第一中学, 河南 新乡 453000)

(3 山西大学 激光光谱研究所 量子光学与光量子器件国家重点实验室, 太原 030006)

(4 山西大学 极端光学协同创新中心, 太原 030006)

摘要: 为了进一步提高基于泛频振动的石英增强光声光谱测声器探测灵敏度, 在一次泛频振动模式下采用一个比商用标准音叉外形尺寸大 5 倍的定制大音叉, 并对其性能进行优化. 通过理论和实验研究得出了音叉与激光的最佳作用位置, 发现音叉的一次泛频振动有两个波腹点, 且在距离音叉根部 8 mm 处, 音叉振臂的振动幅度最大. 微型声音谐振腔由三种不同内径的不锈钢毛细管加工而成, 与音叉组成共轴配置石英增强光声光谱测声器, 用来进一步增强信号幅值. 在最佳微型声音谐振腔配置下, 获得了 30 倍的信号增益因子, 有效提高了石英增强光声光谱测声器的探测灵敏度.

关键词: 石英增强光声光谱; 音叉式石英晶振; 光学气体传感器; 传感器优化; 泛频振动

中图分类号: O433.1; O433.4

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2017)08-0811002-6

Optimization of Overtone Resonance Based Quartz-enhanced Photoacoustic Spectroscopy Spectrophone

MA Ying^{1,3}, YU Liang^{2,3}, ZHENG Hua-dan^{3,4}, LIU Qun¹, QIU Dan-gui¹,
HOU Jian-rong¹, YIN Wang-bao^{3,4}, DONG Lei^{3,4}

(1 China Institute for Radiation Protection, Taiyuan 030006, China)

(2 Xinxiang No. 1 High School, Xinxiang, Henan 453000, China)

(3 State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

(4 Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

Abstract: A custom quartz tuning fork which is 5 times larger than commercial standard quartz tuning fork and operated at the 1st overtone resonance mode was used and optimized to improve the sensitivity of the quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy spectrophone. The optimum exciting position for the laser beam was researched. Two resonance antinodes were found in the 1st overtone resonance, and the maximum signal amplitude was obtained at a distance of 8 mm from the tuning fork support. Acoustic micro-resonators with three different inner diameters were configured with the custom tuning fork to evaluate the performance of the quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy spectrophone. With an optimal parameters, a sensitivity gain factor of 30 was achieved with respect to the signal amplitude obtained by the bare tuning fork without acoustic micro-resonators.

Key words: Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy; Quartz tuning fork; Optical gas sensors; Sensor optimizing; Overtone resonance vibration

OCIS Codes: 110.5125; 280.3420; 300.6340

基金项目: 国家自然科学基金(Nos. 61622503, 61575113)资助

第一作者: 马英(1974—), 女, 高级工程师, 硕士, 主要研究方向为气体、气溶胶检测技术. Email: mying1000@163.com

通讯作者: 董磊(1979—), 男, 教授, 博士, 主要研究方向为光学传感技术. Email: donglei@sxu.edu.cn

收稿日期: 2017-03-03; 录用日期: 2017-05-22

0 引言

石英增强光声光谱技术(Quartz-Enhanced Photoacoustic Spectroscopy, QEPAS)是近年来发展的基于光声光谱效应的新型痕量气体检测技术^[1-3]. 该技术具有高选择性、高灵敏度、以及很强的噪声免疫能力^[4-6], 已被广泛应用到工业废气检测、精细农业、医疗诊断、大气环境监测等领域^[7-9]. 石英增强光声光谱的核心原理是采用一个音叉式石英晶振, 简称音叉, 代替传统的麦克风来探测气体由于吸收激光能量后碰撞退激发而产生的微弱声波^[10-12]. 相比于麦克风, 音叉式石英晶振有以下特点: 1) 商用的音叉式石英晶振固有的谐振频率为 32 768 Hz, 且频率响应带宽仅为 2~4 Hz, 因此音叉式石英晶振仅对频率为 32 768 Hz 附近的声波有响应, 抑制环境噪声能力强; 2) 音叉式石英晶振的品质因数 Q 值在真空中可高达 80 000~100 000, 即使在空气中也可达 8 000~10 000, 探测灵敏度高; 3) 相对于传统的光声池, 音叉式石英晶振体积小, 采样体积小于 1 mm³, 有利于发展紧凑型、小型化的气体传感器^[13-15].

QEPAS 技术中, 激发光被调制到音叉式石英晶振谐振频率的一半, 并准直穿过音叉的振臂间隙^[16-17]. 待测气体吸收激发光能量后通过碰撞退激发产生声波推动音叉振臂振动, 进而通过音叉式石英晶振的压电效应产生电信号. QEPAS 光谱测声器由一个音叉式石英晶振和一组微型声音谐振腔组成. 微型声音谐振腔通过声学设计可以使声波形成驻波共振并达到放大信号的效果. 传统的微型声音谐振腔配置方式有共轴配置(On-beam)和离轴配置(Off-beam)两种^[1]. On-beam 配置通过使用两根不锈钢毛细管垂直安装在音叉式石英晶振的两侧, 使激发光依次穿过毛细管和音叉振臂间隙, 通过谐振腔和音叉式石英晶振的强耦合作用将探测信噪比提高 30 倍^[1]. Off-beam 配置即激发光不再穿过音叉式石英晶振的振臂间隙, 声音谐振腔由一个中部开有一条狭缝的不锈钢毛细管组成, 音叉式石英晶振紧靠谐振腔放置, 这种配置有效地降低了 QEPAS 传感器对光束质量的要求.

过去的 10 年中, 所有 QEPAS 传感器均采用商用的音叉式石英晶振, 标准谐振频率为 32 768 (2¹⁵) Hz, 振臂间隙约为 300 μm . 当量子级联激光器(Quantum Cascade Laser, QCL)、带间级联激光器(Interband Cascade Laser, ICL)、以及光学参量振荡器(Optical Parametric Oscillator, OPO)等中红外光源被用于 QEPAS 技术时, 由于光束无法“清洁”地通过标准音叉 300 μm 的振臂间隙和声音谐振腔, 而产生很强的背景噪声^[5]. 为了达到较高的光声转化效率, 光声光谱中激发光的调制频率应远低于待测分子的振动-平动(Vibration-Translation, V-T)驰豫频率, 因此基于商用标准音叉的 QEPAS 传感器在探测 CO、CO₂、HCN 等 V-T 驰豫较慢的分子时信号幅度和相位均受到影响^[9]. 2013 年意大利巴里理工大学和美国莱斯大学设计了一系列振臂间隙较大且谐振频率仅为 3~7 kHz 的大音叉, 以解决光束准直难题以及使用标准音叉时调制频率过高的问题^[4]. 该大型音叉式石英晶振的尺寸比标准音叉大 3~5 倍, 振臂间隙可达 800 μm ~1 mm. 2015 年山西大学将一个谐振频率为 7.2 kHz 的大音叉应用到 on-beam 配置中, 将探测信噪比提高了 40 倍, 但是微型声音谐振腔的总长度高达 46 mm(声波波长 λ), 远大于基于标准音叉的谐振腔长度 8.8 mm, 从而削弱了较大的音叉振臂间隙带来的优势^[7]. 2015 年意大利巴里理工大学设计了基频振动频率为 2.8 kHz, 第一泛频振动频率为 17.7 kHz 的定制音叉, 通过音叉振臂几何参数的优化设计, 减小音叉根部的支持损耗, 使该音叉的第一泛频振动 Q 因子比基频振动的 Q 因子高 2 倍, 进而使该音叉在未配备声音谐振腔的情况下, 第一泛频的 QEPAS 信号幅度比基频带高 5 倍, 开创了音叉式石英晶振泛频带用于 QEPAS 技术的时代^[6]. 根据 $\lambda = C_{\text{sound}}/f$ (λ 、 C_{sound} 、 f 分别为声波波长、声速、声波频率), 泛频带的使用可以显著降低谐振腔的长度.

本文将大音叉泛频带应用于 on-beam QEPAS 配置, 采用三种不同内径的微型声音谐振腔配备到大音叉上组成泛频增强型 QEPAS 光谱测声器, 并研究了谐振腔长度对光谱测声器 Q 值和信号幅度的影响.

1 实验

1.1 光谱测声器设计

实验所用的大音叉首先由石英晶体经过切片制成基体, 然后在音叉基体两面镀金膜以增强电荷收集能力^[4], 如图 1(a). 大音叉的叉指长度 L 为 17 mm, 振臂宽度 w 为 1 mm, 振臂间隙 g 为 800 μm . 该设计相对于商用的标准音叉大大增加了 L/w , 从而减小了音叉根部的支持损耗, 使音叉的第一泛频振动的 Q 因子高

于音叉基频振动的 Q 因子. 该音叉的基频振动频率约为 2.8 kHz , 一次泛频振动频率约为 17.7 kHz . 由图 1 (a)所示的音叉和图 1(b)所示的微型声音谐振腔组成的 on-beam QEPAS 光谱测声器如图 2.

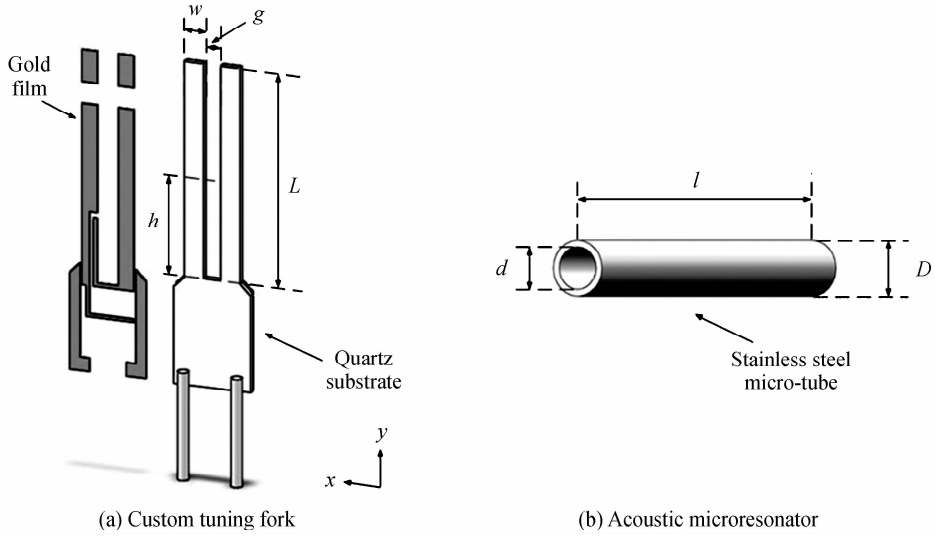


图 1 光谱测声器结构

Fig. 1 Schematic of the spectrophone

1.2 实验装置

图 2 展示了基于定制大音叉的 QEPAS 实验装置. 一个中心波长为 $1.3 \mu\text{m}$ 的分布反馈式(Distributed Feed Back,DFB)半导体激光器(Chengdu Huaying)被用来激发光声信号,水蒸气 (H_2O) 被选做目标分子, H_2O 在 7306.75 cm^{-1} 的吸收线被选做目标吸收线. 双通道函数发生器(Tektronix AFG 3102)的两个通道分别产生频率为 10 MHz 的斜坡信号和频率为 $17.7/2 \text{ kHz}$ 的正弦信号作为波长扫描信号和调制信号. 斜坡信号和正弦信号通过叠加后被输入到激光器电流源驱动器(ILX Lightwave LDX-3220). 激光器输出的光经过光纤准直器准直后穿过如图 2 所示的 on-beam QEPAS 光谱测声器. 光谱测声器中谐振腔被垂直于音叉平面安装, 激发光依次穿过谐振腔和音叉振臂间隙, 末端距音叉平面约 $20 \mu\text{m}^{[1]}$. 功率计(Ophir Nova II)被放置在光谱测声器后监视出射光功率. 待测气体吸收激发光能量后, 通过光声效应产生声波, 声波推动音叉振臂振动, 进而通过压电效应产生电信号. 音叉输出的微弱电流首先经过一个反馈电阻为 $10 \text{ M}\Omega$ 的跨阻抗放大器, 将电流转化为电压信号, 然后电压信号被送到锁相放大器进行二次谐波解调, 锁放参数为 1 s , 12 dB . 经过锁相放大器解调的信号被带有数据采集(Data Acquisition, DAQ)卡的笔记本电脑采集并通过 LabView 程序反演出待测气体浓度.

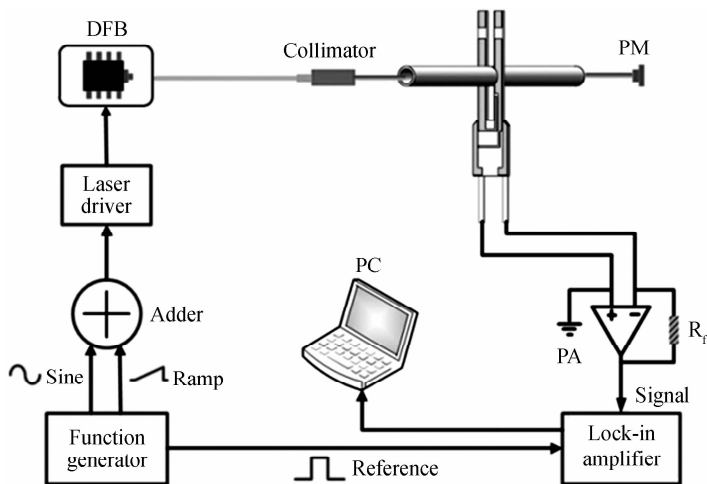


图 2 基于定制音叉的石英增强光声光谱实验装置示意图

Fig. 2 Schematic diagram of QEPAS setup based on custom tuning fork

2 实验结果和讨论

2.1 光束最佳作用位置和最佳调制深度研究

音叉振臂振动时,距离音叉根部距离为 h 的质点在 x 方向偏离振臂中心位置的距离 S 可表示为

$$S = A \left\{ \cosh(kh) - \cos(kh) + \frac{\sin(kL) - \sinh(kL)}{\cos(kh) + \cosh(kh)} [\sinh(kh) - \sin(kh)] \right\} \quad (1)$$

式中, A 为共振幅度、 L 为音叉振臂的长度、 h 为光束作用位置距离音叉根部的距离(见图 1), k 为关于音叉振臂振动模式的常数,对于音叉的一次泛频振动模式 kL 值为 4.694. 理论模拟石英音叉(Quartz Tuning Fork, QTF)一次泛频振动时 $h=0\sim 17$ mm 振臂上的质点偏离中心位置的大小,如图 3(a). 在实验研究时,空气中的 H_2O 浓度被直接吸收光谱技术实时监测^[9]用以归一化 QEPAS 信号. 音叉被固定在一个有旋转台和角位台组成的组合调节架上,光纤准直器被固定在一个 xyz 三维调节架上,用于调节光束和离音叉根部的距离 h . 归一化的 QEPAS 信号随 h 的变化如图 3(b), QEPAS 信号分别在 $h=8$ mm 和 $h=16$ mm 处出现两个极值但具有相反的相位,它们分别对应的是大音叉一次泛频振动的两个波腹. $h=0$ mm 到 $h=8$ mm 处的单调上升是因为振臂力矩的增加, $h=17$ mm 处信号下降的原因是接近音叉开口处,声波泄露无法有效推动音叉振臂. 研究发现激光作用在 $h=8$ mm 和 $h=17$ mm 处 QEPAS 信号获得极值,且 $h=8$ mm 处比 $h=17$ mm 处信号幅度高 4%.

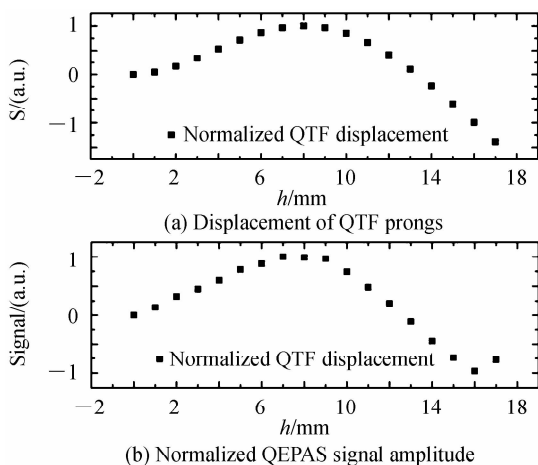


图 3 归一化的石英音叉振臂振幅以及石英增强光声信号随 h 的变化

Fig. 3 Normalized QTF prong displacement and QEPAS signal amplitude as a function of h

将光纤准直器固定在 $h=8$ mm 处,激发光的调制深度被优化,结果如图 4. 激发光调制深度从 0.18 cm^{-1} 变化到 0.57 cm^{-1} , 发现当调制深度大于 0.36 cm^{-1} 时,继续增加调制深度,归一化的 QEPAS 信号幅度不再明显增加,说明最优的调制深度为 0.36 cm^{-1} .

2.2 谐振腔参数优化

采用内径 d 分别为 1.2 mm、1.3 mm 和 1.65 mm 的三种不锈钢毛细管加工成微型声音谐振腔和大音叉组成 on-beam 配置. 三种毛细管的长度都预先切割成 $l=9.5$ mm, 且均装配在距离音叉根部 $h=8$ mm 处, 毛细管末端与音叉平面之间的距离约为 20 μm . 基于不同内径谐振腔的 QEPAS 光谱测声器在测量 H_2O 时得到的归一化信号如图 5. 基于内径 1.3 mm 谐振腔的 QEPAS 光谱测声器可获得最大信号幅值, 分别比基于内径 1.65 mm 和 1.2 mm 谐振腔的测声器获得的信号幅值高约 35% 和 15%.

谐振腔的长度 l 对腔内的声压分布有重要影响,内径为 1.3 mm 的不锈钢毛细管被切割成长度从 5 mm ($\sim \lambda/4$) 到 9.5 mm ($\sim \lambda/2$) 的一系列微型声音谐振腔. 品质因子 Q 的值越低,表示音叉与谐振腔之间能量交换越有效,耦合程度越高,因此品质因数 Q 被用来评估谐振腔和音叉的耦合程度. 当 $l=8$ mm 时 Q 因子在达到极值 ~ 9220 , 比 $l=5$ mm 时 $Q=12630$ 低 27%, 证明谐振腔长度为 8 mm 时音叉与谐振腔之间的声波耦合效率最高. 图 6 展示了 QEPAS 光谱测声器的 Q 因子和归一化的 QEPAS 信号幅度与谐振腔长度的关系. 当

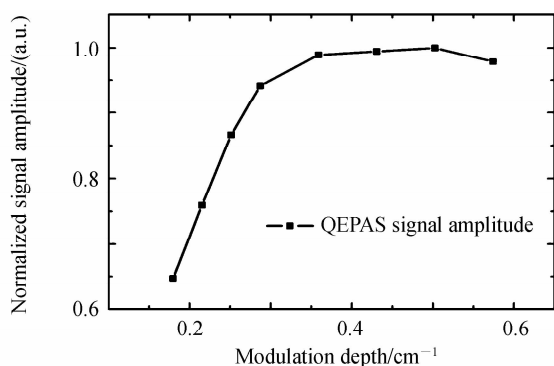


图 4 石英增强光声信号随调制深度的变化

Fig. 4 QEPAS signal amplitude as a function of laser modulation depth

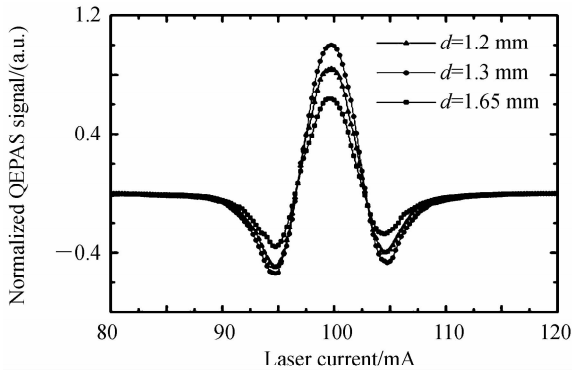


图5 装配了三种不同内径谐振腔的光谱测声器输出信号比较

Fig. 5 Comparison of QEPAS signals obtained by spectrophones with three different acoustic microresonators

谐振腔的长度 l 由 5 mm ($\sim \lambda/4$) 增加到 8 mm 时, 信号幅度单调增大, 并在 $l=8$ mm 时达到最大值; 当 $l>8$ mm 时 QEPAS 信号幅度减小. 图 7 展示了一维声学谐振腔中的驻波模式声压分布. 当两根不锈钢毛细管完全紧靠时构成一个理想的一维声学谐振腔, 此时腔中形成声学驻波, 腔长满足条件 $l=\lambda/4$. 在 on-beam QEPAS 配置中, 两根不锈钢毛细管中间被插入一个音叉, 且毛细管末端与音叉表面有一条距离约为 $20 \mu\text{m}$ 的狭缝, 谐振腔中的驻波模式被轻微破坏, 最优腔长增加到 $\lambda/4 < l < \lambda/2$, 因此 l 最优值为 8 mm.

2.3 信号对比

一对内径 $d=1.3$ mm, 长度 $l=8$ mm 的微型声音谐振腔被装配在 $h=8$ mm 处与大音叉构成 on-beam QEPAS 光谱测声器. 采用该测声器测量 1.8% 的 H_2O 时获得的 QEPAS 信号, 和不加微型声音谐振腔的裸音叉获得的 QEPAS 信号对比如图 8. 标准大气压下, 最优化的 on-beam QEPAS 测声器获得的信号 56.5 mV 相比于裸音叉 1.9 mV 提高了约 30 倍. 考虑到噪声水平分别为 $1.9 \mu\text{V}$ 和 $1.6 \mu\text{V}$, 通过谐振腔的优化设计, on-beam QEPAS 光谱测声器相比于裸音叉, 可有效将探测信噪比提高 25 倍左右.

3 结论

本文将大音叉泛频带应用于 on-beam QEPAS 技术中, 设计了基于定制大音叉的 QEPAS 光谱测声器并对其谐振腔参数进行了优化设计. 当所用的大音叉工作在一次泛频振动模式时, 理论和实验研究了激发光束与音叉的最佳作用位置. 实验发现该音叉一次泛频振动的最佳响应位置为距离音叉根部 $h=8$ mm 处, 与理论吻合. 三种不同粗细的不锈钢毛细管被加工成微型声音谐振腔并与音叉组成 on-beam QEPAS 光谱测声器. 根据一维声学谐振腔理论, 在选定的最佳光束作用位置和最优谐振腔内径情况下优化了谐振腔的长度, 获得最优的谐振腔长为 $l=8$ mm. 在探测 1.8% 的 H_2O 时, 最优化的 on-beam QEPAS 光谱测声器将

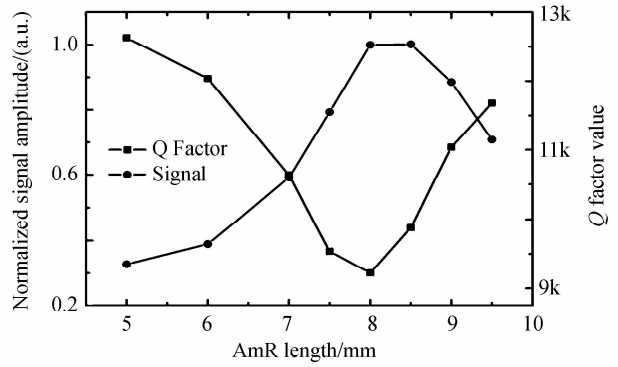


图6 光声信号和 Q 因子随谐振腔的长度变化

Fig. 6 Normalized QEPAS signal and Q factor as a function of acoustic micro-resonator length

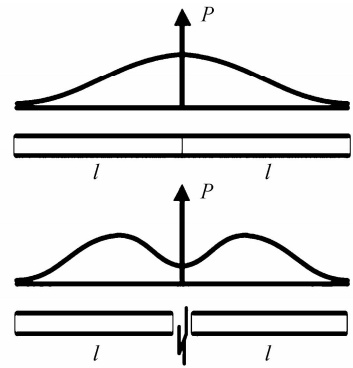


图7 声压在一维共振谐振腔中的分布

Fig. 7 Sound pressure distribution in one-dimensional acoustic micro-resonator

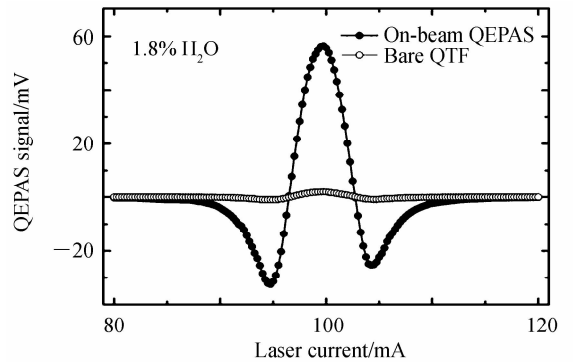


图8 优化的共轴光谱测声器和裸音叉的石英增强光声信号比较

Fig. 8 QEPAS signal comparison between optimized on-beam spectrophone and bare QTF

QEPAS 信号幅度有效提高了约 30 倍, 噪声水平基本保持一致. 实验在标准大气压下进行, 光谱测声器的性能可以通过气压优化进一步提升. 同时考虑到实验中谐振腔的初始长度 9.5 mm, 与最优长度 8 mm 接近, 谐振腔内径的优化可能同时受到选定腔长的影响. 详细的谐振腔参数研究工作目前正在研究当中, 不同内径与不同长度的声音谐振腔均被配置到定制音叉上以进一步探究基于定制音叉的 QEPAS 声音谐振腔的最优参数.

参考文献

- [1] DONG Lei, KOSTEREV A A, THOMAZY D, *et al.* QEPAS spectrophones: design, optimization, and performance [J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2010, **100**(3): 627-635.
- [2] DONG Lei, WU Hong-peng, ZHENG Hua-dan, *et al.* Double acoustic microresonator quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy[J]. *Optics Letters*, 2014, **39**(8): 2479-2482.
- [3] WU Hong-peng, DONG Lei, ZHENG Hua-dan, *et al.* Beat frequency quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy for fast and calibration-free continuous trace-gas monitoring[J]. *Nature Communications* 2017, **8**:15331.
- [4] PATIMISCO P, SAMPAOLO A, ZHENG Hua-dan, *et al.* Quartz - enhanced photoacoustic spectrophones exploiting custom tuning forks: a review [J]. *Advances in Physics*: X, 2017, **2**(1): 169-187.
- [5] ZHENG Hua-dan, DONG Lei, PATIMISCO P, *et al.* Double antinode excited quartz-enhanced photoacoustic spectrophone [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, **110**(2): 021110.
- [6] ZHENG Hua-dan, DONG Lei, SAMPAOLO A, *et al.* Overtone resonance enhanced single-tube on-beam quartz enhanced photoacoustic spectrophone [J]. *Applied Physics Letters*, 2016,**109**(11): 111103.
- [7] WU Hong-peng, SAMPAOLO A, DONG Lei, *et al.* Quartz enhanced photoacoustic H₂S gas sensor based on a fiber-amplifier source and a custom tuning fork with large prong spacing [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, **107**(11): 111104.
- [8] ZHENG Hua-dan, DONG Lei, SAMPAOLO A, *et al.* Single-tube on-beam quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy [J]. *Optics Letters*, 2016, **41**(5): 978-981.
- [9] YIN Xu-kun, DONG Lei, ZHENG Hua-dan, *et al.* impact of humidity on quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy based co detection using a near-IR telecommunication diode laser [J]. *Sensors*, 2016, **16**(2): 162.
- [10] LIU Kun, ZHAO Wei-xiong, WANG Lei, *et al.* Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy of HCN from 6433 to 6613cm⁻¹[J]. *Optics Communications*, 2015, **340**: 126-130.
- [11] YI Hong-ming, CHEN Wei-dong, VICET A, *et al.* T-shape microresonator-based quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy for ambient methane monitoring using 3.38 μ m antimonide-distributed feedback laser diode [J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2014, **116**(2): 423-428.
- [12] MA Yu-fei, HE Ying, YU Xing, *et al.* HCl ppb-level detection based on QEPAS sensor using a low resonance frequency quartz tuning fork [J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2016, **233**: 388-393.
- [13] WANG Fu-peng, CHANG Jun, WANG Qiang, *et al.* Improvement in QEPAS system based on miniaturized collimator and flat mirror [J]. *Optics Communications*, 2016, **381**: 152-157.
- [14] LIU Yong-ning, CHANG Jun, LIAN Jie, *et al.* Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy with right-angle prism [J]. *Sensors*, 2016, **16**(2): 214.
- [15] LIN Cheng, ZHU Yong, WEI Wei, *et al.* A novel QEPAS with microresonator in the open environment [J]. *International Journal of Thermophysics*, 2013, **34**(8-9): 1413-1420.
- [16] LI Zhi-li, WANG Zhen, WANG Chao, *et al.* Optical fiber tip-based quartz-enhanced photoacoustic sensor for trace gas detection [J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2016, **122**(5): 1-6.
- [17] GONG Ping, XIE Liang, QI Xiao-qiong, *et al.* A quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy sensor for measurement of water vapor concentration in the air [J]. *Chinese Physics B*, 2015, **24**(1): 014206.