

音叉式石英晶振共振频率对 QEPAS 传感器性能影响的研究

李彪^{1,2}, 董磊^{1,2}, 武红鹏^{1,2*}

1. 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, 山西 太原 030006
2. 极端光学协同创新中心, 山西 太原 030006

摘要 以标准商用石英音叉(QTF)为测声模块的石英增强光声光谱(QEPAS)技术是近年来发展迅速的一种痕量气体检测技术。标准商用 QTF 拥有的小体积, 高 Q 值, 高共振频率的特性使 QEPAS 技术具有结构紧凑且对环境噪声免疫的特性。但传统商用 QTF 狭窄的振臂间距以及较高的共振频率, 使其无法在光源光束质量较差或被测气体弛豫率较低的情况下被很好的应用于 QEPAS 系统。为克服上述难题, 非标准商用 QTF($f_0 \neq 32.7$ kHz)被设计制作并越来越多的被装配于 QEPAS 系统中。因此, QTF 共振频率对 QEPAS 系统信噪比的影响需要被详细研究。以水汽为目标气体, 采用二次谐波调制解调技术研究了 QTF 共振频率对基于 QEPAS 技术传感器性能的影响。实验结果表明, QTF 共振频率的变化对 QEPAS 系统的输出信号及噪声均有显著影响且 QTF 共振频率与 QEPAS 系统信噪比之间存在反比关系。上述结论对 QEPAS 系统中非标准 QTF 的设计及使用均具有重要的指导价值, 对该类传感器的研发及应用意义重大。

关键词 石英增强光声光谱; 石英音叉; 光学气体传感器; 痕量气体检测

中图分类号: O433.1 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2019)10-3056-05

引言

痕量气体检测在大气监测、国防科研、能源化工、医疗诊断多个领域均有广泛的应用。研发分子识别精度高、响应时间短、探测灵敏度高、结构紧凑且可连续实时监测痕量气体浓度的传感器具有十分重大的研究意义和应用价值。光声光谱技术是众多气体检测技术中的一种, 该技术以高选择性、高探测精度、长寿命以及低成本等特性成为长期以来人们研究的热点。光声光谱技术是一种成熟的气态物质检测技术^[1-3], 传统光声光谱传感器中的测声模块由光声池和麦克风构成。然而光声池较大的几何尺寸使传统光声光谱传感器无法实现结构紧凑的设计; 此外光声池共振频率一般较低($f_0 < 2$ kHz)且与环境噪声频率存在重叠区间, 这使得传统光声光谱极易受到环境噪声的干扰^[4]。为解决上述问题, 美国莱斯大学激光应用研究小组于 2002 年提出了石英增强光声光谱(QEPAS)技术^[5], 该技术使用体积小巧的音叉式石英晶振(QTF)代替光声池和宽频域麦克风完成光声信号的收集。由于商用 QTF 的共振频率($f_0 = 32.768$ kHz)远高于

常见环境噪声频率并且当两振臂对称性振动时 QTF 才能基于石英材料的压电特性产生压电信号因此商用 QTF 的使用使 QEPAS 系统对环境噪声具有很好的免疫力。此外, 微型谐振腔以及谐波调制解调技术的使用进一步提高了基于 QEPAS 技术的系统探测灵敏度, 例如 QEPAS 技术对 CH₃OH 气体的探测归一化噪声等效吸收系数可达 10^{-11} cm⁻¹ · W · Hz^{-1/2}。QEPAS 技术不仅拥有传统光声光谱技术的所有优点并且具有体积小、性价比高、对环境噪声免疫等特性, 因此该技术一经提出便受到研究人员的广泛关注, 截止目前已被成功用于 CO, CO₂, CH₄, CH₂O 和 NH₃ 等常见有机或无机气体的浓度检测。

目前 QEPAS 系统主要以商用 QTF 作为声音探测模块, 但以下两个因素限制了该技术的进一步发展。气体吸收特定波段光子能量后通过无辐射退激发转化为热能并由于调制激发的周期性变化进而产生了声波。在声波的产生过程中气体的碰撞弛豫时间(气体内部能量从振动动能转换到平动动能的时间)是非常重要的一个因素, 通常只有当气体弛豫时间远小于激光调制周期时光声信号才能被有效激发。由于调制解调技术的使用, QEPAS 技术中声波激励光源的调制频率

收稿日期: 2018-08-21, 修订日期: 2018-12-20

基金项目: 国家自然科学基金项目(61805132, 61622503, 61575113), 山西省“1331 工程”重点学科建设计划经费, 山西省中青年拔尖创新人才支持计划, 山西省“三晋学者”特聘教授支持计划(2017QNSJXZ-04), 2018 中央提升武红鹏人才事业启动经费(227545028)资助

作者简介: 李彪, 1995 年生, 山西大学量子光学与光量子器件国家重点实验室, 激光光谱研究所硕士研究生

e-mail: qepaslibiao@163.com * 通讯联系人 e-mail: wuhp@sxu.edu.cn

将被严格要求等于 QTF 共振频率或者共振频率的倍频。因此,商用 QTF 较高的共振频率使得 QEPAS 技术无法很好的被应用于 CH_4 和 CO 等低弛豫率气体分子测量。一种可行的解决方案是设计共振频率较低的非标准 QTF,相关实验研究已经证明了这一方案的可行性。此外,由于激励光源与音叉振臂的接触会引入很大的噪声从而降低系统探测灵敏度,而商用 QTF 两振臂间 0.3 mm 的间隙使得 LED 和 THz 等光束质量较差的光源无法很好的被用于 QEPAS 传感器的激励光源。为解决这一问题,一种可行的方案是设计振臂间距较宽的新型 QTF,而 QTF 几何尺寸的改变会直接改变其共振频率。综上所述,研究 QTF 共振频率与 QEPAS 信号之间的关系对 QEPAS 技术的发展应用以及新型音叉的设计制作均意义重大。

使用 4 只不同共振频率的 QTF 为研究对象,采用二次谐波调制解调技术系统的研究了 QTF 共振频率与 QEPAS 传感器信号幅值,噪声水平以及探测灵敏度之间的关系。由于 QEPAS 技术没有波长选择性^[6],因此本文选择分布反馈半导体激光器为激励光源并以大气中的水汽作为目标气体开展实验研究。

1 实验部分

实验装置如图 1 所示,QTF 被固定在高度、俯仰角度以及旋转角度均可精密调节的底座上。一个中心波长为 1 368.8 nm 的 DFB 激光器(华赢有限公司,型号:DFB-136810C1424)被装配在可对激光器温度和电流实现精密控制的电路控制单元(CEU)中。当该激光器温度被控制在 23.7 °C 时,其输出波长可覆盖 H_2O 位于 $7\,306.02\text{ cm}^{-1}$ 处的特征吸收线。除控制激光器工作温度及驱动电流外,CEU 还对激光器波长进行了调制,调制频率为 QTF 共振频率的一半($f_0/2$)。固定于三维调节架上的光纤耦合聚焦器对激光进行汇聚准直,准直后的激光光斑直径约为 $100\ \mu\text{m}$ 。平行光束从 QTF 两振臂之间无碰撞通过并与 QTF 振臂间气体相互作用

产生光声信号。QTF 振臂在声波推动下产生对称性振动,振动的强度、频率等信息经石英材料的压电特性被转换为电信号,并经由 QTF 的两电极引脚被传输至前置放大器。前置放大器放大后的压电信号被传输至锁相放大器(Stanford 公司,型号:SR830)进行 $2f$ 解调处理。解调后的信号被传输至微型计算机以完成数据收集及显示。上述过程均由微型计算机通过运行 Labview 程序实现自动化控制。传统 QEPAS 传感器会在 QTF 两端对称性的装配一组微型声音谐振腔以增强 QEPAS 信号^[6],但微型声音谐振腔并不影响不同共振频率的 QTF 对单位光声信号强度的响应特性。为简化实验装置本文仅使用裸音叉为测声模块研究 QTF 共振频率与基于 QEPAS 技术传感器性能之间的关系。

2 结果与讨论

2.1 非标准 QTF 性能比较

为研究 QTF 共振频率对基于 QEPAS 技术的痕量气体传感器性能的影响,4 个振臂长度及振臂间间距相同但共振频率不同的 QTF 分别被作为声学换能器装配在 QEPAS 传感器中。为便于描述,我们将实验所用音叉分别命名为 QTF #1—QTF #4,其几何形状及尺寸如图 2 和表 1 所示。

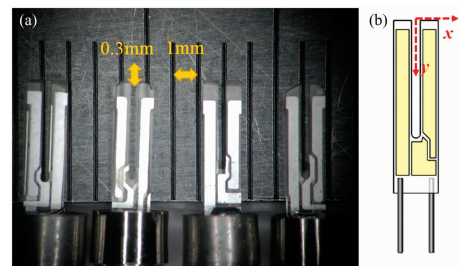


图 2 不同共振频率石英音叉实物图

从左至右分别为 QTF #1—QTF #4

Fig. 2 The picture of the QTFs with different frequencies

QTF #1 to QTF #4 from left to right

表 1 不同频率石英音叉的参数

Table 1 The parameters of QTFs with different frequencies

名称	f/Hz	Q	R/Ω	尺寸/mm
QTF #1	30 717.3	8 063	1 075.56	3×8
QTF #2	32 764.2	8 721	973.27	3×8
QTF #3	37 995.4	8 697	992.35	3×8
QTF #4	39 990.0	14 343	230.04	3×8

由于 QTF #1—QTF #4 几何尺寸及结构相同,因此上述 QTF 的性能差异可被认为是由音叉共振频率的不同引起。QTF #1—QTF #4 的频率响应特性首先被研究。信号发生器对 QTF 任意一个引脚施加一个幅值恒定且频率随时间变化的正弦激励信号,激励信号的频率在石英音叉预期共振频率附近被扫描,与此同时 QTF 对该激励信号响应产生的压电信号将通过其另一引脚被同步测量。为精确测量 QTF 输出的微弱压电信号,自制的跨阻抗前置放大器被使用,该放大器可对微弱压电信号实现六个数量级的放大。不同 QTF

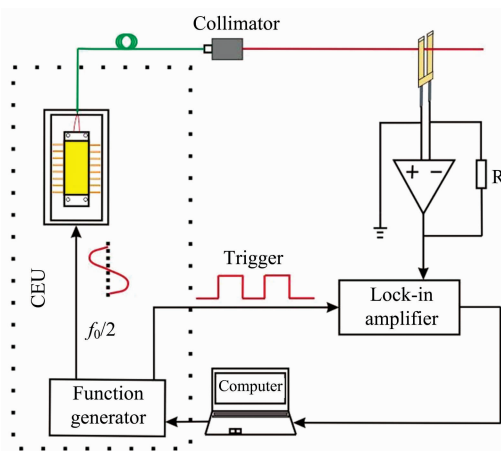


图 1 实验装置图

CEU: 控制电路单元

Fig. 1 Experimental setup

CEU: Control electronics unit

的频率响应特性曲线如图 3 所示。

前期工作显示 QTF 压电信号将在其共振频率处达到最大并且压电信号的峰值与频率响应曲线半高全宽的比值对应于 QTF 的品质因数 Q 。因此通过分析图 3 所示不同 QTF 频率响应曲线可知, QTF # 1—QTF # 4 的共振频率分别为

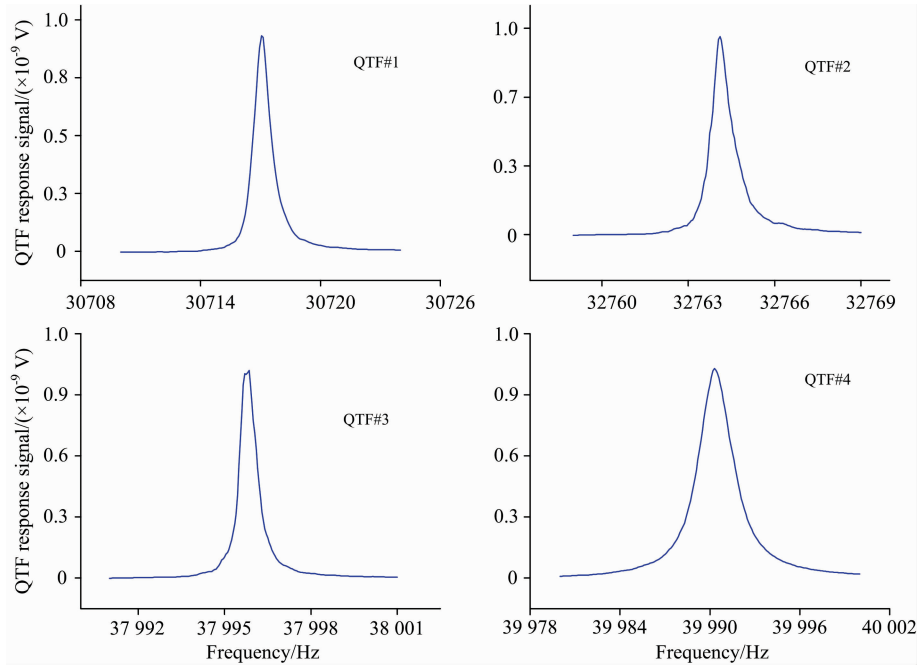


图 3 常压下 QTF # 1—QTF # 4 的频率特性曲线

Fig. 3 The qualitative representation of the frequency response curves for different QTF

实验研究显示 QTF 振臂不同部位对光声信号的响应程度不同^[7-8], 因此光声激励位置首先被研究。为便于描述光声信号与 QTF 的相对位置, 如图 2(b)所示的直角坐标系被建立: 以石英音叉两振臂顶端中心位置作为坐标原点, 沿振臂方向且指向振臂底端的方向为 y 轴正方向, x 轴与 y 轴垂直。由于光声信号是由激励光源与水汽经光声效应产生, 并且声波是以激励光源所在位置为中心向四周传播, 因此我们可以将激励光源位置作为声波激励位置进行研究, 通过变换激励光源相对于 QTF 的位置并测量与之对应 QEPAS 信号的大小来研究光声激励的最佳位置。实验中, 激励光源无碰触穿过 QTF 两振臂间间隙($x=0$), 在激励光源相对音叉振臂水平位置(x 方向)保持不变的情况下, 分别测量了激励光源位于 QTF 振臂垂直方向上(y 方向)不同位置处时系统输出的 QEPAS 信号。为提高探测灵敏度, 二次谐波调制解调技术被使用, 因此对以不同 QTF 为测声模块的 QEPAS 系统, 激光调制频率分别为 15 358.65, 16 382.1, 18 997.7 和 19 995.0 Hz。为消除环境中水汽浓度变化对实验结果的影响, 光声探测模块外部装配有微型气室。此外, 我们搭建了基于直接吸收原理的水汽浓度测量装置对气室内水汽浓度进行实时测量, 并以此对 QEPAS 信号进行水汽浓度归一化处理, 结果如图 4 所示。由图可知, 从 $y=0$ mm 开始, 随着光声信号与 QTF 振臂有效作用面积不断增加, QEPAS 系统输出的 $2f$ 信号幅值快速增强; 在激光光束完全进入振臂间隙

($y=0.5$ mm)之后, QEPAS 信号幅值随 y 的增加趋势变缓, 直至 $y=0.7$ mm 处达到最大; 随着 y 的进一步增加, QEPAS 信号幅值开始显著下降, 这是由于对下端被固定在同一基底上的两只音叉振臂而言, 相同强度的声波信号在靠近基底的部位可引起的振臂位移变小, 从而使 QTF 输出的压电信号减弱^[6]。如图 4 所示, 实验结果显示实验所用不同共振频率 QTF 的最佳光声信号激励位置均为 QTF 振臂顶端以下 $y=0.7$ mm 的位置。因此, 下文所述实验均将激励光源固定于该位置以使 QEPAS 系统获得最佳的信噪比。

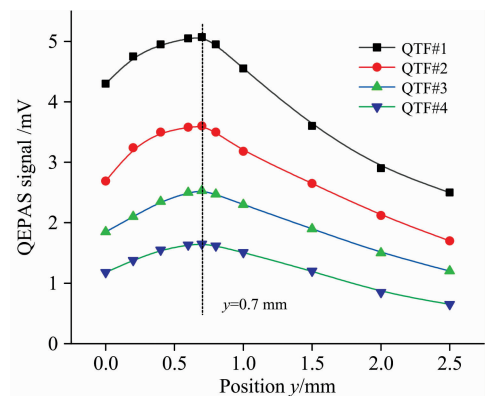


图 4 归一化的 QEPAS 信号相对于激励光源位置 y 的变化
Fig. 4 Normalized QEPAS signal as a function of the laser position for different QTFs

由于本实验中使用的是低功率激光器 ($P=19.96 \text{ mW}$), 因此 QEPAS 信号满足等式(1)所示关系式

$$S = kPc\alpha\epsilon Q \quad (1)$$

其中 k 是与系统相关的常量, P 是激光入射光功率, c 是目标气体浓度, α 是吸收光谱二次谐波的峰值, ϵ 是吸收光功率转化成声能的转化效率, Q 是 QTF 的品质因数。由式(1)可知, QEPAS 信号与调制深度以及目标吸收谱线的线型、线宽均存在紧密的关联, 且对于固定的吸收谱线线宽存在一个最佳的调制深度^[9]。因此, 在气压保持 700 Torr 不变的情况下, 有必要对系统的调制深度进行研究。由于光声信号的强弱与探测器件无关, 因此仅以装配有 QTF #1 的 QEPAS 系统对激光调制深度进行实验优化, 结果如图 5 所示。由图可知, 在 700 Torr 气压下, 对水汽位于 $7\,306.02 \text{ cm}^{-1}$ 处的特征吸收线而言, 激光的最佳调制深度为 11 mA。

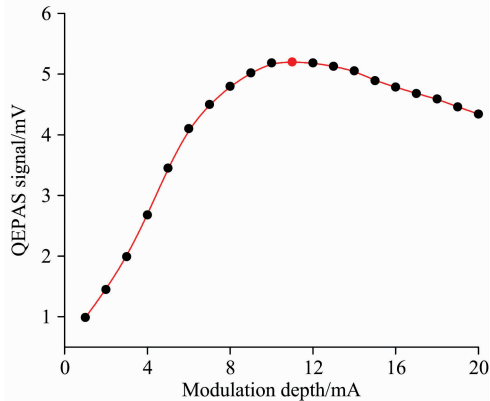


图 5 标准气压下 QEPAS 信号作为激光调制深度的函数
Fig. 5 Normalized QEPAS signal as a function of the modulation depth

基于上述优化结果, 我们分别使用以 QTF #1—QTF #4 为测声模块的 QEPAS 系统对大气中水汽进行了测量, 结果如图 6 所示。由图可知, QEPAS 信号幅值随 QTF 共振频

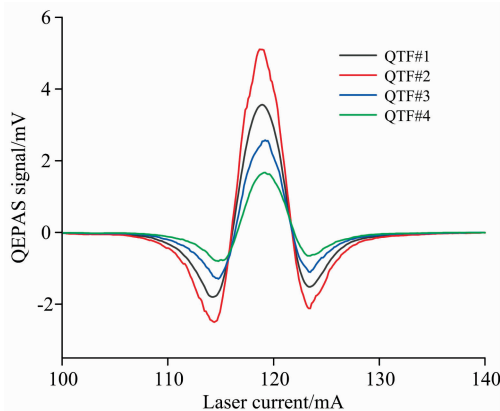


图 6 大气中水汽的 QEPAS 信号
Fig. 6 QEPAS signal of H₂O in atmosphere

率的降低而增加。

2.2 噪声的等效测量

痕量气体传感器的系统噪声会直接影响传感器的探测灵敏度, 因此有必要对装配有不同 QTF 的 QEPAS 系统噪声进行测定。理论研究表明, QTF 在电学上等效于串联谐振电路且其热噪声可以被表述为

$$\sqrt{V_{\text{rms}}^2} = R_g \sqrt{\frac{4K_B T}{R}} \sqrt{\Delta f} \quad (2)$$

其中 $\sqrt{V_{\text{rms}}^2}$ 是噪声的均方根电压, R_g 是互阻抗放大器中反馈电阻的值, K_B 是玻尔兹曼常数, T 是 QTF 温度, Δf 是系统探测带宽, R 是 QTF 的等效电阻^[9-10]。通过分析 QTF 频率响应曲线获得 QTF 等效电阻后计算可得 QEF #1—QTF #4 为声能转换器的 QEPAS 系统噪声分别为 2.5, 2.3, 2.0 和 1.8 μV 。为方便比较, 本文以图 6 所示 QEPAS 信号幅值与系统噪声的比值反映系统的信噪比。图 7 展示了 QEPAS 系统信噪比与其测声模块共振频率之间的关系。使用反比例函数对实验结果进行拟合获得的 R-Square 值为 0.998, 这一结果说明 QEPAS 系统信噪比与 QTF 共振频率之间存在近似反比的关系。这意味着, 通过设计共振频率较低的非标准 QTF 可以在不改变 QEPAS 系统整体结构的情况下有效的提高系统探测灵敏度。

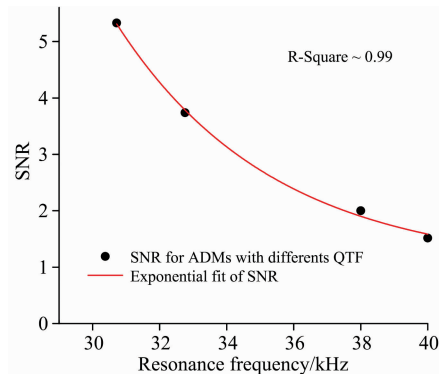


图 7 QEPAS 系统信噪比作为 QTF 共振频率的函数
Fig. 7 The relationship between system SNR with the frequency of the QTF

3 结论

利用中心波长为 1 368.8 nm 的近红外分布式反馈激光器作为激励光源, 分别以 4 只不同共振频率的 QTF 为测声模块搭建 QEPAS 系统, 并在常压下以大气中水汽为目标气体研究了 QTF 共振频率对 QEPAS 系统性能的影响。结果显示, QEPAS 系统的信号幅值, 噪声水平以及探测灵敏度均与测声模块共振频率成反比。这一结论对光声光谱技术中新型石英音叉的设计及使用均具有指导意义, 并将促进光声光谱技术在低弛豫率气体测量领域的应用。

References

- [1] Curl R F, Capasso F, Gmachl C, et al. Chem. Phys. Lett. , 2010, 487(1): 1.
- [2] Li B, Zheng C T, Liu H F, et al. Sens. Actuators, B, 2016, 225: 188.
- [3] Dong M, Zheng C T, Miao S Z, et al. Sensors, 2017, 17: 2221.
- [4] Ma Y F, Lewicki R, Razeghi M. Opt. Express, 2013, 21: 1008.
- [5] Kosterev A A, Bakhirkin Y A, Curl R F, et al. Opt. Lett. , 2002, 27(21): 1902.
- [6] Dong L, Wu H P, Zheng H D, et al. Opt. Lett. , 2014, 38(8): 2479.
- [7] Dong L, Kosterev A A, Thomazy D, et al. Appl. Phys. B, 2010, 100(3): 627.
- [8] Wu H P, Dong L, Ren W, et al. Sens. Actuators B, 2015, 206: 364.
- [9] Wu H P, Dong L, Zheng H D, et al. Sens. Actuators B, 2015, 221: 666.
- [10] MA Yu-fei, HE Ying, YU Xin, et al(马欲飞, 何 应, 于 欣, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2017, 37(4): 1033.

Impact of Resonance Frequency of Quartz Tuning Fork on QEPAS-Based Sensors

LI Biao^{1,2}, DONG Lei^{1,2}, WU Hong-peng^{1,2*}

1. State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan 030006, China
2. Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China

Abstract Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy (QEPAS) based spectrophone has developed rapidly in recent years. With the benefit of a quartz tuning fork (QTF), the QEPAS technique offers compact structure and low sensitivity to surrounding noise. However, it's difficult to use the standard QTF for slowly relaxing gas molecule detection as the high resonance frequency of QTF. And it is a big challenge to use the laser with low beam quality as the excitation light sources of the QEPAS system because the gap size between the prongs of the standard QTF is too narrow. Non-standard QTFs ($f_0 \neq 32.768$ kHz) have been installed in QEPAS system as acoustic transducer in recent years. Therefore, the influence of the resonance frequencies of QTFs on the QEPAS system performance must be studied in detail. In this paper, the water vapor was used as the target gas and was detected via different QEPAS-based gas sensors in which the four QTFs with different resonance frequencies were installed as the acoustic transducer. The experimental results show that the resonant frequency of the QEPAS acoustic transducer has a significant effect on the signal-to-noise ratio of the QEPAS system. The reported results are extremely useful in the design of the QEPAS spectrophone.

Keywords Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy; Quartz tuning fork; Optical gas sensor; Trace-gas detection

(Received Aug. 21, 2018; accepted Dec. 20, 2018)

* Corresponding author