

基于椭圆腔共振的石英增强光声光谱理论研究

赵彦东 方勇华 李扬裕 吴军 李大成 崔方晓 刘家祥 王安静

Theoretical research on quartz enhanced photoacoustic spectroscopy base on the resonance in an elliptical cavity

Zhao Yan-Dong Fang Yong-Hua Li Yang-Yu Wu Jun Li Da-Cheng Cui Fang-Xiao Liu Jia-Xiang Wang An-Jing

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 65, 190701 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.190701

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.190701>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I19>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

一种采用双换能器和摆式结构的宽频振动能量采集器

[A broadband vibration energy harvester using double transducers and pendulum-type structures](#)

物理学报.2016, 65(13): 130701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.130701>

硅纳米线/氧化钒纳米棒复合材料的制备与气敏性能研究

[Synthesis and gas-sensing properties of the silicon nanowires/vanadium oxide nanorods composite](#)

物理学报.2016, 65(9): 090701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.090701>

顶栅石墨烯离子敏场效应管的表征及其初步应用

[Characterization and preliminary application of top-gated graphene ion-sensitive field effect transistors](#)

物理学报.2016, 65(8): 080701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.080701>

基于中红外量子级联激光器和石英增强光声光谱的CO超高灵敏度检测研究

[Research on high sensitivity detection of carbon monoxide based on quantum cascade laser and quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy](#)

物理学报.2016, 65(6): 060701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.060701>

基于电学调制相消法和高功率蓝光LD的离轴石英增强光声光谱NO₂传感器设计和优化

[Design and optimization of off-beam NO₂ QEPAS sensor by use of E-MOCAM with a high power blue laser diode](#)

物理学报.2015, 64(13): 130701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.130701>

基于椭圆腔共振的石英增强光声光谱理论研究*

赵彦东¹⁾²⁾ 方勇华^{1)†} 李扬裕¹⁾ 吴军¹⁾ 李大成¹⁾ 崔方晓¹⁾
刘家祥¹⁾ 王安静¹⁾²⁾

1) (中国科学院安徽光学精密机械研究所, 中国科学院通用光学定标与表征技术重点实验室, 合肥 230031)

2) (中国科学技术大学, 合肥 230026)

(2016年4月27日收到; 2016年6月17日收到修改稿)

石英增强光声光谱技术作为一种新型的光学检测技术, 已被广泛应用于痕量气体检测场合. 其中声波共振增强性能是决定检测灵敏度的重要因素. 为提高光声光谱检测系统的信噪比和检测极限, 提出一种新型的椭圆腔共振石英增强光声光谱检测方法, 建立了其声学特征模型并利用有限元分析方法对光声腔内部声学特性进行仿真研究. 研究表明, 椭圆腔的特征模态在(2, 1)模态下长轴两端声压达到最大值. 通过对椭圆腔的尺寸和形状进行优化, 建立实验装置, 得到目标气体硫化氢检测极限为6.3 ppm (parts per million), 相应的归一化噪声等效吸收系数为 $2.02 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \text{ W}/\text{Hz}^{1/2}$.

关键词: 石英增强光声光谱, 椭圆共振腔, 声场模态, 检测极限

PACS: 07.07.Df, 07.05.Fb, 42.60.-v, 42.55.Px

DOI: 10.7498/aps.65.190701

1 引言

光声光谱技术作为一种光学检测技术, 已经被广泛应用于各种痕量气体检测场合, 例如大气监测、医学诊断、工业过程控制等; 其具有高灵敏度、宽动态范围和零背景干扰的优点, 有很好的应用前景^[1-7]. 常见微音器作为声波探测器的光声光谱检测系统, 其光声池的共振频率比较低, 容易受到低频噪声和气流噪声的干扰. 此外, 这种光声池的尺寸也相对较大^[8].

Kosterev^[9]在2002年提出了石英增强光声光谱技术(quartz enhanced photoacoustic spectroscopy, QEPAS), 这种技术中石英音叉既作为声波探测器, 又作为声波共振器. 石英音叉 Q 值很高, 可以抑制环境噪声干扰. 这种技术相比于传统的光声光谱技术具有成本低(商用音叉)和尺寸小

(mm数量级)的优点^[10-12]. 目前QEPAS常见的两种结构主要有共轴型和离轴型. 共轴型结构的两个微型共振管沿光路分别放置在音叉的前后, 光束从石英音叉两个臂之间穿过; 离轴型结构光束沿着管轴穿过一个独立的共振管, 在共振管中心有一狭缝, 石英音叉贴在管的狭缝上. 这两种结构利用共振管中气体吸收光能而产生的声波在管中进行积累形成共振, 通过共振管和石英音叉之间的能量耦合以及音叉的压电效应将气体吸收的光能量转换为电信号^[13-15]. 在痕量气体检测中, QEPAS灵敏度高, 对外界环境具有强抗干扰性, 具有传统光声光谱技术探测的波长无选择性, 探测灵敏度与光源功率成正比等优点, 并且结合现有的石英音叉作为声波探测器具有大动态范围和微型结构化的特点.

本文提出一种基于椭圆腔共振的石英增强光声光谱检测方法, 以进一步提高检测灵敏度. 相比较常规的QEPAS方法, 这种技术采用的声波增强

* 安徽省自然科学基金(批准号: 1608085QD80)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yhfang@aiofm.ac.cn

方式基于椭圆柱腔,而非共振管.这种腔结构可以实现腔内激光多次反射,增加气体分子的吸收光程;同时,声波在腔内部传播会形成固定的本征模态,从而达到声波二维共振增强的作用.声波探测器采用石英音叉,音叉两臂之间的间隙贴在狭缝上但不接触,声波通过椭圆腔壁两端靠近焦点的狭缝传播出来,引起声场和石英音叉之间的耦合,激发石英音叉的压电效应得到光声信号.

2 理论分析及模型建立

光声腔中,激发的声波可以用 Helmholtz 波动方程来描述,通过对方程的非其次解分析,可以得到光声腔内部声波的本征模态.假设光声腔内部是无损耗的,其内部齐次 Helmholtz 方程可以描述为^[16]

$$\nabla^2 \mathbf{p}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c_s^2} \frac{\partial^2 \mathbf{p}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = 0, \quad (1)$$

其中, \mathbf{p} 表示声压, c_s 表示声速, \mathbf{r} 表示位移矢量, t 表示时间.

图 1 描述的即为椭圆腔共振 QEPAS 模块结构图,腔体内部表面镀金,激光光束从窗口处入射到光声腔内部,光在腔体中多次反射,在两个焦点处形成强的激光源.整个模块结构放在密闭的气室内,以测量气室内部的痕量气体(其中 $a = 4.9 \text{ mm}$, $b = 3.5 \text{ mm}$, $f = 1.47 \text{ mm}$, $W = 12 \text{ mm}$, $H = 8 \text{ mm}$, $L = 3.6 \text{ mm}$, $T = 0.5 \text{ mm}$, $E = 0.23 \text{ mm}$, $D = 0.7 \text{ mm}$, $K = 1 \text{ mm}$, $h = 0.6 \text{ mm}$)

为了简化求解过程,采用椭圆柱坐标系求解 Helmholtz 方程.在椭圆柱坐标系下,方程如下所示^[17]:

$$\frac{2}{h^2(\cosh 2\xi - \cos 2\eta)} \left(\frac{\partial^2 p}{\partial \xi^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial \eta^2} \right) + \frac{\partial^2 p}{\partial z^2} + k_0^2 p = 0, \quad (2)$$

其中, h 表示半焦距; k_0 表示波数; z 表示轴向变量; ξ 表示径向变量,其集合为共焦椭圆族; η 表示椭圆角坐标,其集合为双曲线族.

方程 (2) 可以使用分离变量法求解,腔内部声压表示为

$$p(\xi, \eta, z, t) = \Phi(\xi, \eta)Z(z)T(t), \quad (3)$$

其中, t 为时间, $\Phi(\xi, \eta)$ 为和轴向垂直的截面内 ξ 和 η 的函数, $Z(z)$ 为轴向变量的函数, $T(t)$ 为时间的函数.

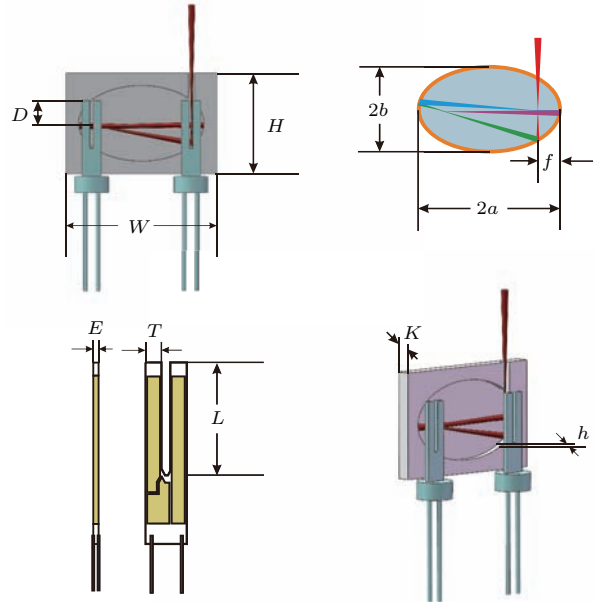


图 1 (网刊彩色) 椭圆腔共振 QEPAS 模块结构图

Fig. 1. (color online) Module structure of the elliptical resonant cavity.

代入方程中 (2), 得到下式:

$$\left[\frac{2Z}{h^2(\cosh 2\xi - \cos 2\eta)} \left(\frac{\partial^2 p}{\partial \xi^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial \eta^2} \right) + \Phi \frac{d^2 Z}{dz^2} + \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \Phi Z \right] T(t) = 0. \quad (4)$$

再次使用分离变量法将 $\Phi(\xi, \eta)$ 分为相互正交的角向函数 $R(\xi)$ 和径向函数 $\psi(\eta)$:

$$\Phi(\xi, \eta) = R(\xi)\psi(\eta), \quad (5)$$

可以得到如下方程:

$$d^2\psi/d\eta^2 + (\lambda - q^2 \cos 2\eta)\psi = 0, \quad (6)$$

$$d^2R/d\xi^2 - (\lambda - q^2 \cosh 2\xi)R = 0, \quad (7)$$

其中, 方程 (6) 为角向马蒂厄方程, 方程 (7) 为径向马蒂厄方程; λ 为分离变量常数, q 为特征值.

由光声腔壁为刚性边界条件, 可以得到周期方程:

$$\frac{\partial C e_m(\xi, q)}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_0} = 0 \quad (m = 0, 1, 2, 3 \dots), \quad (8)$$

$$\frac{\partial S e_m(\xi, \bar{q})}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_0} = 0 \quad (m = 1, 2, 3, 4 \dots), \quad (9)$$

其中, ξ_0 为椭圆的径向边界, $C e_m(\xi, q)$ 和 $S e_m(\xi, \bar{q})$ 分别为第一类 m 阶径向马蒂厄函数偶函数和奇函数解, q 为对应马蒂厄偶函数本征值, \bar{q} 为对应马蒂厄奇函数本征值.

通过(8)式和(9)式计算得到本征值,从而得到第 m 阶对应的第 r 个固有频率,本征频率可以描述为

$$\omega_{m,r} = c_s \sqrt{4q_{m,r}/h^2}, \quad (10)$$

$$\bar{\omega}_{m,r} = c_s \sqrt{4\bar{q}_{m,r}/h^2}. \quad (11)$$

对于马蒂厄函数的数值计算方法,可以用无穷傅里叶级数表示,采用递推法计算每级傅里叶级数前面的系数,从而求得解^[18].在实际计算中,傅里叶级数无穷多,每一级的系数不可能全部都求得,只能降低级数来减少计算,同时也导致了精度减少.本文采用有限元分析方法对实际物理场建模并仿真计算,建立的模型如图2所示.由于光声光谱检测技术基于光声光热原理,物理场分析模块选用热声学模块.激光入射会经过椭圆的焦点,光束经过多次反射会无限逼近椭圆的长轴,所以模型的光源设定为沿着长轴的光束.腔内气体载气选择氮气,气体在腔内声速为349 m/s,声波在腔内的传播波长为10.47 mm.在模型中,光声池壁为刚性边界条件,热声方程的源项为激光光束,压力采用一个大气压,温度采用室温293 K.

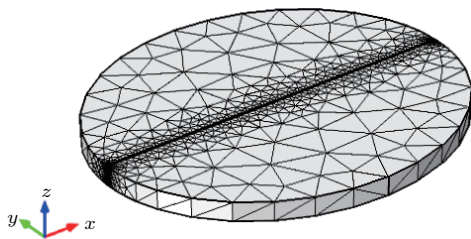


图2 加入激光光源的声场有限元分析模型图
Fig. 2. The finite element mesh model with a line laser source.

模型中激光光束作为光声效应的激发源,其强度由下定义:

$$S = \frac{(\gamma - 1)\alpha P_0}{\rho_0 c_s^2}, \quad (12)$$

其中, γ 表示气体绝热系数, α 表示气体吸收系数, P_0 表示激光功率, ρ_0 表示气体密度, c_s 表示气体介质中声波的传播速度.模型中待测气体选择为硫化氢,激光功率为15 mW.

光声腔内部镀金,激光会在腔内部形成多次反射.由于腔的结构为椭圆扁腔而非椭球腔,激光光束在腔内的传播不对称.激光光束的传播光路如图3所示.由图3(a)可知入射光线只要经过焦点

F_1 , 则其必会经过焦点 F_2 , 如此多次反射逐渐和椭圆长轴重合.文中使用的激光光纤聚焦器可以达到最小光斑直径0.1 mm,远小于腔的尺寸,可以近似认为激光光束会聚于焦点.光束在 z 方向是发散,由于腔的上下表面都镀反射层,其传播方向如图3(b)所示,激光束通过多次反射光束被约束为一条光束带.

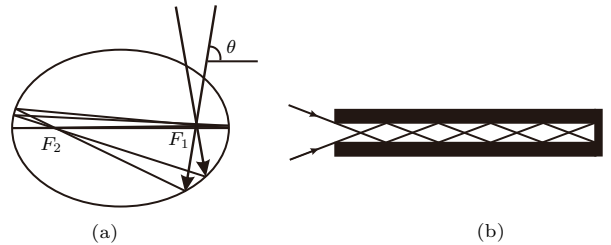


图3 激光光束在腔内的传播光路 (a) xy 平面光路图; (b) z 方向光路图
Fig. 3. The laser beam path in the cavity: (a) Optical path in the xy plane; (b) optical path in z direction.

在腔体内部放置石英音叉不仅会影响光路和声场的传播,还会造成石英音叉的背景噪声增加,这里设计的椭圆腔体在 z 方向上的尺度远远小于声波波长,此时在 z 方向上并不能形成独立传播的声波,沿 z 轴方向每一点的声压都相同^[16].在腔体壳开狭缝将石英音叉两臂间隙紧贴狭缝并且不接触,这样保证了声场的完整性,同时满足石英音叉的高灵敏探测.

3 仿真计算结果与分析

光声光谱检测系统的灵敏度和检测极限主要取决于光声池内部的声场特性.椭圆平面声波的模态由径向模态和角向模态组成.由于声波探测器使用的是石英音叉,腔体共振频率以32.768 kHz附近作为研究的频率范围.本方法中,影响声场共振频率以及品质因素的主要包括声场模态选择、激光入射角度、腔体尺寸和形状、光声腔高度.

3.1 腔体截面声波模态分析

采用有限元分析方法计算腔内声场截面前四个模态以及对应的共振频率.在声波波长和腔尺寸在同一数量级时,腔内模态分布具有普适性.这里选取椭圆的长半轴为5.5 mm,离心率为0.8作为例子来研究声波的模态分布,如图4所示.

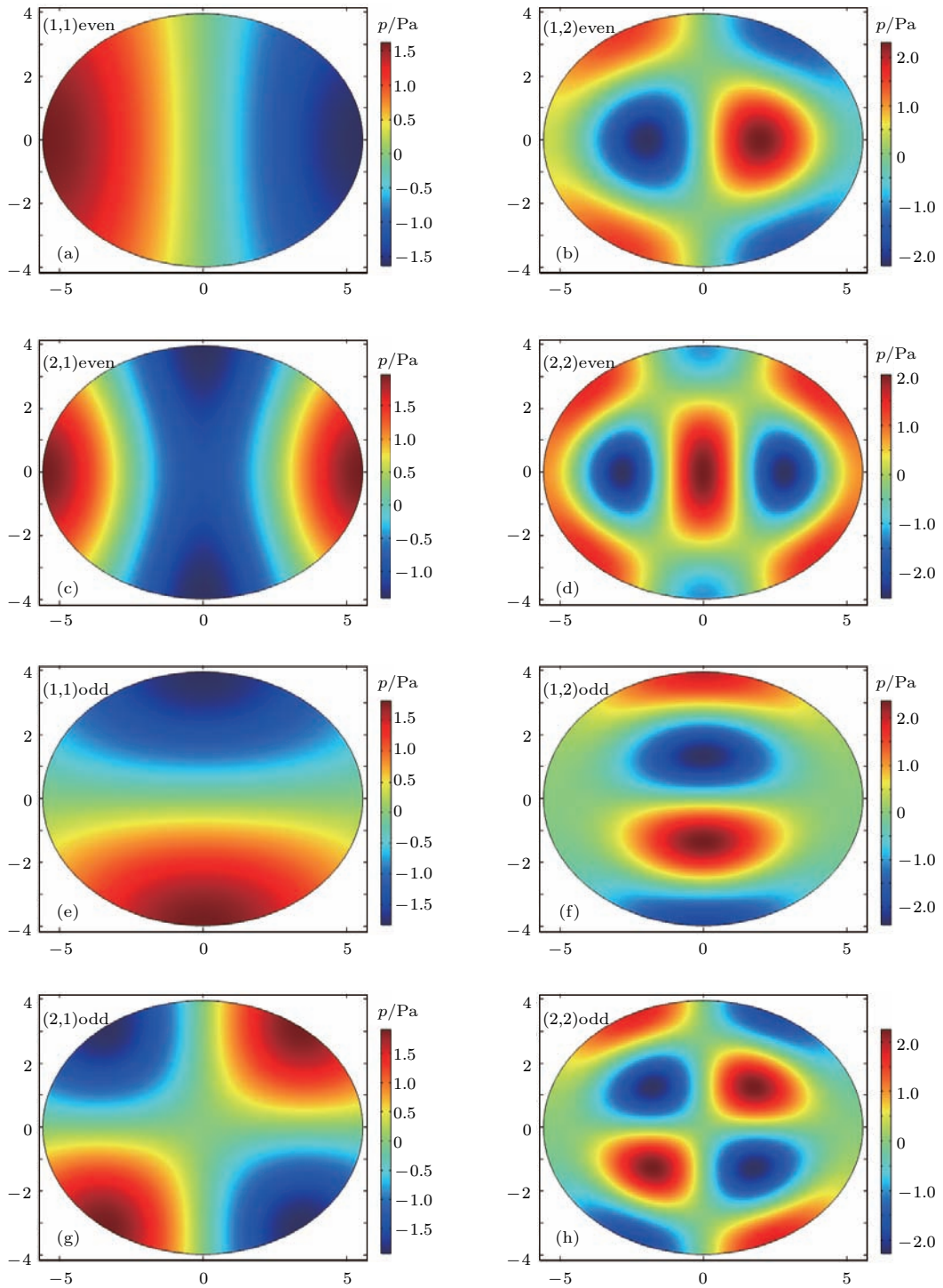


图4 (网刊彩色) 椭圆腔前四阶声场奇偶模态分布图 (a) (1, 1)阶偶模态 18286 Hz; (b) (1, 2)阶场偶模态 60192 Hz; (c) (2, 1)阶场偶模态 32758 Hz; (d) (2, 2)阶场偶模态 73220 Hz; (e) (1, 1)阶场奇模态 24904 Hz; (f) (1, 2)阶场奇模态 69907 Hz; (g) (2, 1)阶场奇模态 36160 Hz; (h) (2, 2)阶场奇模态 81504 Hz

Fig. 4. (color online) Distribution of fore-four acoustic field odd and even modes: (a) (1, 1) order even mode 18286 Hz; (b) (1, 2) order even mode 60192 Hz; (c) (2, 1) order even mode 32758 Hz; (d) (2, 2) order even mode 73220 Hz; (e) (1, 1) order odd mode 24904 Hz; (f) (1, 2) order odd mode 69907 Hz; (g) (2, 1) order odd mode 36160 Hz; (h) (2, 2) order odd mode 81504 Hz.

图4(a)—(d)表示声场偶模态,在这种模态下,椭圆的长轴上只包含径向模式声波的波节,而短轴上角向波节和径向波节均存在.随着阶数升

高,长轴包含的波节增多,相应的调制频率升高.图4(e)—(h)表示声场奇模态,在这种模态下,椭圆的长半轴和短轴上角向波节和径向波节共同存在.

长轴短轴方向都包含多个声波波节, 而且具有对称性. 在实际应用中, 这两类模式是共同存在的, 共振频率不同所激发的声场模式也不同. 考虑到腔体加工尺寸以及共振频率匹配, 采用 (2, 1) 阶场偶模态, 石英音叉的共振频率包含在腔共振频率范围之内.

在声场 (2, 1) 阶偶模态图中, 沿着椭圆长轴的方向, 声场分布如图 5 所示. 声场的最大值处于长轴的两端, 为保证腔内光的多次反射特性, 而且考虑到在焦点处激光能量密度大, 选取焦点处作为石英音叉放置的位置. 保证了光多次反射特性和声波的增强.

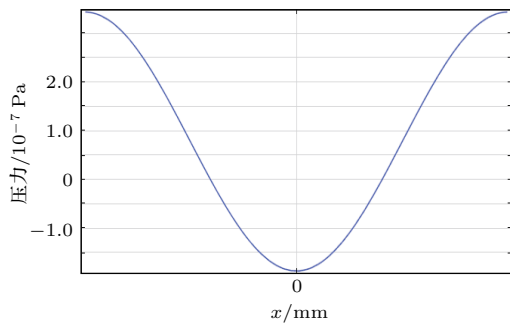


图 5 腔内声压与长轴坐标之间的关系

Fig. 5. The relationship between the acoustic pressure and long axis coordinate.

3.2 激光入射角度影响分析

光声腔内部的声场激发与激光入射条件也有关系, 激光入射的位置会影响气体分子吸收光程和声场模式的分布, 从而影响光声信号的幅值. 通过对激光光束入射角度分别为 0° , 10° , 30° , 45° , 60° 和 90° 进行计算, 得到光声腔在各角度的共振频率和品质因素的关系, 如图 6 所示.

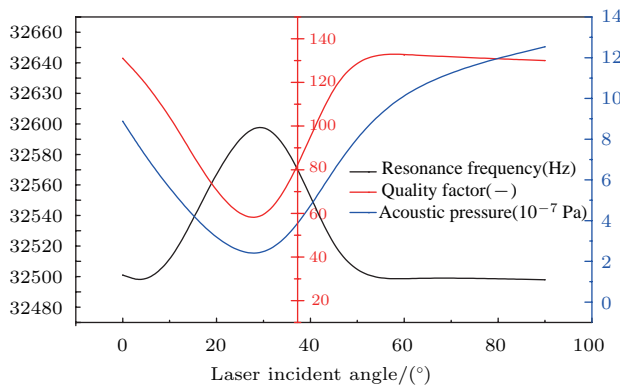


图 6 (网刊彩色) 激光入射角度对腔内声场影响

Fig. 6. (color online) The influence of laser beam incident angle on acoustic field in the cavity.

由图 6 可以看出, 在入射角度为 0° 到 90° 范围内, 由于光声腔的几何尺度没有发生变化, 声波波长的约束条件无变化, 其共振频率基本保持不变; 但在入射角度为 30° 时, 由于入射激光和腔内其他声波模式耦合作用, 共振频率在 30° 入射角会出现异常而突然增大约 100 Hz; 品质因素在入射角 30° 时也会出现异常而急剧减小, 其他入射角度基本保持不变. 为了避免激光入射方向和长轴方向成 30° , 计算得到激光垂直长轴入射时第一次反射后传播方向为 30° 所对应的椭圆腔离心率为 0.577. 即椭圆腔的离心率不等于 0.577, 可以认为腔内声场不受到激光光束入射角度的影响.

这种情况出现的原因是腔内声场激发的方向选择性. 激光光源与声场的耦合效率可用下式表示:

$$F_n = \frac{1}{L} \int g(r)p_n(r) dV, \quad (13)$$

其中, L 表示腔体内光程的长度; $g(r)$ 表示光源光强度, 为高斯分布; $p_n(r)$ 表示声场模式分布.

由 (13) 式可知在声场被激发时, 由激光光束的空间分布和声场的本征模态空间分布的积分所决定, 入射角直接影响激光光束的空间分布, 进而影响光源与声场的耦合效率. 为进一步研究在激光入射角为 30° 时腔内声场特征, 计算了腔内声场空间分布, 如图 7 所示. 图中, (2, 1) 阶场偶模态几乎没有被激发, 而 (1, 1) 阶场奇模态和激光空间耦合形成的声波模态被激发. 由于 (1, 1) 阶场奇模态的共振频率主要在 24904 Hz 附近, 所以造成了腔内部品质因素的急剧降低.

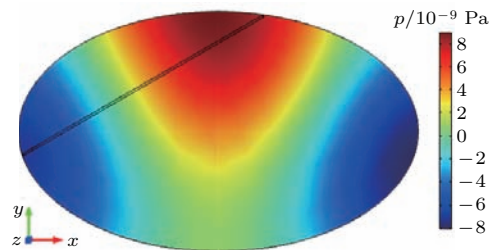


图 7 (网刊彩色) 激光入射角为 30° 时对应的声场模式分布

Fig. 7. (color online) The acoustic mode with the 30 degree laser incident angle.

3.3 椭圆尺寸和形状影响分析

椭圆的尺寸主要包括椭圆的长轴和短轴, 文中用半长轴和离心率来描述椭圆腔截面的尺寸和形

状. 考虑到光声腔的尺寸与声波波长处于同一数量级, 所以选取 5 mm 附近作为椭圆长半轴的长度值, 离心率选择 0.5—0.8. 在共振频率附近, 不同长半轴和离心率椭圆腔所对应的声场分布结果如图 8 所示. 椭圆长半轴的范围为 4.8—5.2 mm, 离心率的范围为 0.5—0.8. 在离心率不变的条件下, 由于腔内声波的传播边界没有改变, 声波的损耗几乎不变, 所以图中显示声场基本不会随椭圆长半轴变化; 但声场强度会随离心率的增加而减小. 对于不同长半轴长度和离心率, 共振频率也不相同.

不同尺寸和形状的椭圆腔对应的共振频率和腔内部声压如图 9 所示. 图 9(a) 描述了在不同的离心率下, 椭圆腔共振频率与长半轴之间的关系. 在离心率不变的条件下, 椭圆腔的长轴决定了声波在腔内的波节数, 共振频率会随着椭圆长半轴的长度

增加而减小, 近似呈线性反比关系; 在椭圆半长轴不变的条件下, 由于离心率的变化会导致椭圆短轴的变化, 从而引起短轴方向上声波波节数的变化, 进一步影响椭圆腔的共振频率, 这种关系近似为线性正比关系. 椭圆腔的共振频率是由其长半轴长度和离心率共同决定, 通过调节长半轴长度和离心率可以改变光声腔的共振频率. 图 9(b) 描述了在不同的离心率下, 椭圆腔内部声压与长半轴之间的关系. 在离心率固定的情况下, 由于腔内声波反射时切线方向的损耗固定不变, 腔内声压几乎不会受到椭圆长半轴长度的影响; 但是腔内声压会随着离心率的增加而减小. 因为离心率较大时, 声波在腔壁反射时切线方向上的损耗会增大, 而随着离心率变小, 椭圆腔体逼近圆腔, 声波反射时切线方向损耗减小, 从而引起声压增大.

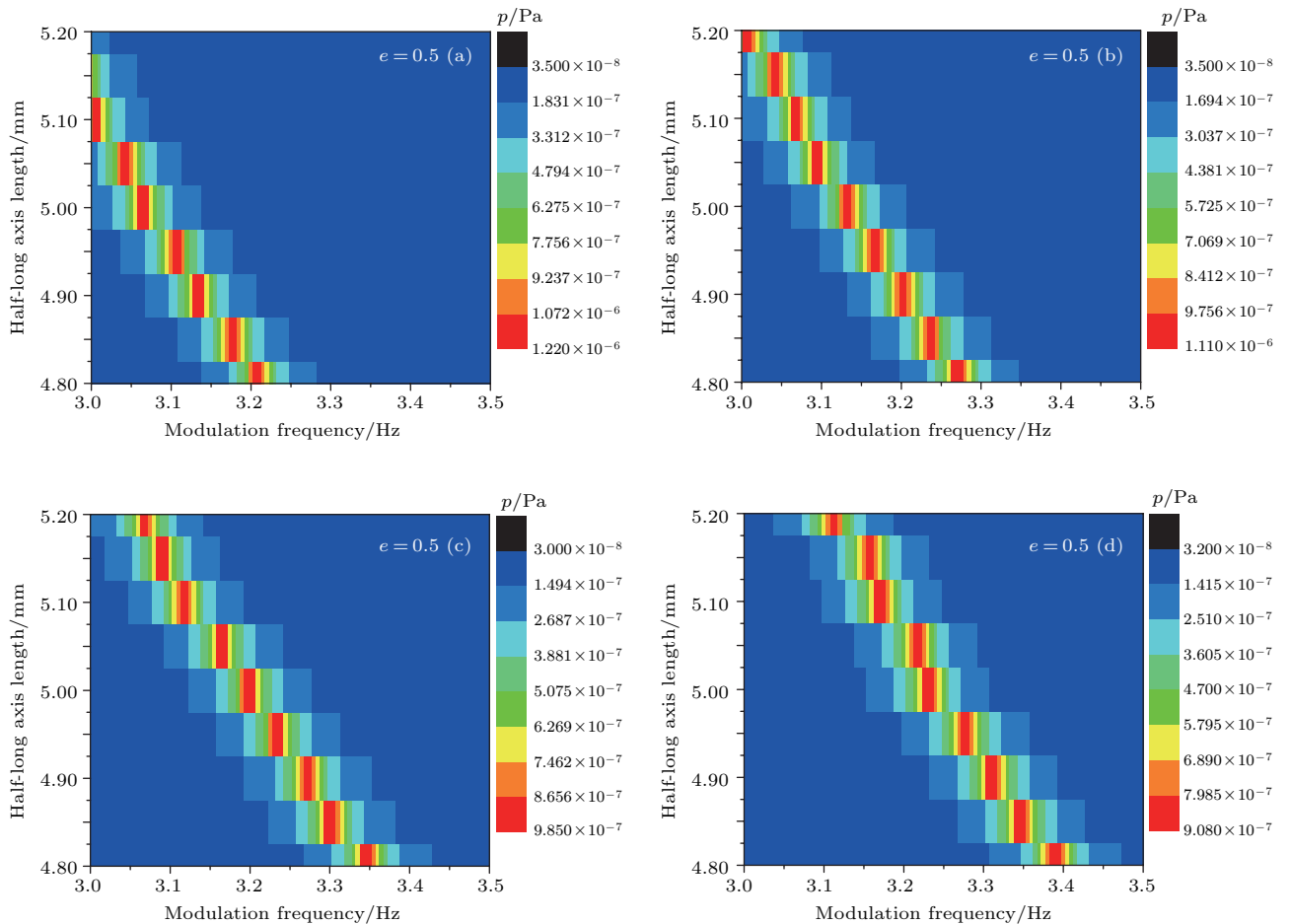


图 8 (网刊彩色) 椭圆腔长半轴和离心率对声场的影响 (a) 离心率 $e = 0.5$ 对应的腔内声场特性; (b) 离心率 $e = 0.6$ 对应的腔内声场特性; (c) 离心率 $e = 0.7$ 对应的腔内声场特性; (d) 离心率 $e = 0.8$ 对应的腔内声场特性

Fig. 8. (color online) The influence of half-long axis and eccentricity on the acoustic pressure in the cavity: (a) The acoustic property with the eccentricity of 0.5; (b) the acoustic property with the eccentricity of 0.6; (c) the acoustic property with the eccentricity of 0.7; (d) the acoustic property with the eccentricity of 0.8.

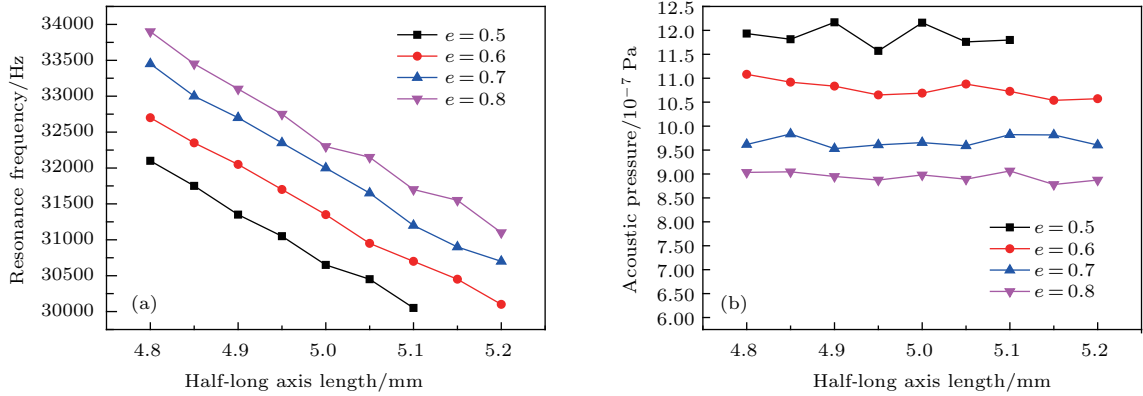


图9 (网刊彩色) 光声腔的尺寸以及形状特性 (a) 不同离心率共振频率和长半轴长度之间的关系; (b) 不同离心率声压和长半轴长度之间的关系

Fig. 9. (color online) Photoacoustic cavity properties of dimension and shape: (a) Relationship between resonance frequency and half long axis; (b) relationship between acoustic pressure and half long axis.

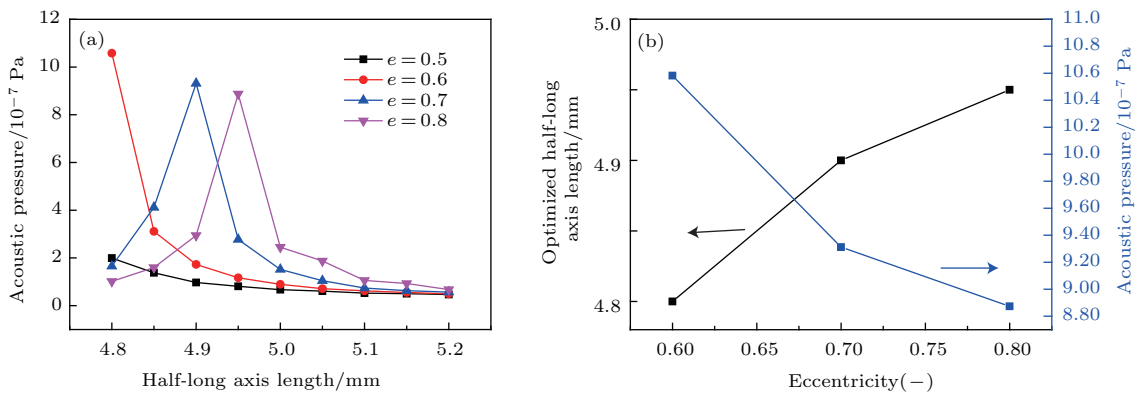


图10 (网刊彩色) 固定调制频率 32750 Hz 光声腔的尺寸形状特性 (a) 不同长半轴长度以及离心率下腔内声压值; (b) 不同离心率对应的最优化长半轴长度以及声压

Fig. 10. (color online) Photoacoustic cavity properties of dimension and shape with a fixed modulation frequency 32750 Hz: (a) Acoustic pressure with different half long axis lengths and eccentricities; (b) the optimized half long axis lengths and acoustic pressure with different eccentricities.

在 QEPAS 技术中, 石英音叉作为声波共振器和探测器, 其共振频率为 32768 Hz. 实际使用中, 由于音叉直接置于检测气体中而非真空, 其共振频率会稍偏离 32768 Hz, 偏移一般小于 100 Hz, 故调制频率一般控制在 32768 Hz 附近. 本方法中模型的调制频率定为 32750 Hz, 在此频率下腔内声场特性如图 10 所示. 由图 10(a) 可以看出随着半长轴的增加, 声压值在最佳半长轴达到最大值. 10(b) 图描述了椭圆离心率和最优化长半轴长度之间的关系, 随着离心率的增加最优化长半轴长度增加, 但离心率的增加会导致腔内声压减小. 为了保证高检测精度同时满足实际装配条件, 本模型以长半轴 4.9 mm 和离心率 0.7 作为最优化椭圆尺寸和形状.

3.4 椭圆腔高度影响分析

由于光声腔的高度远小于腔内声波波长, 可以认为在 z 方向上声场近似相等, 声场在这个方向呈现非共振效应. 模型中选取了椭圆长半轴为 4.9 mm、离心率为 0.7 的椭圆腔, 计算得到腔内声压、共振频率和品质因素与光声腔高度之间的关系, 如图 11 所示. 图 11(a) 中, 随着腔高度的增加, 共振频率向高频方向移动. 由图 11(b) 中腔内声压、共振频率和品质因素的变化可以看出当腔在 z 方向上的尺度增加时, 由于共振频率和声压 z 方向上的分量逐渐增加, 造成整个腔内部的共振频率和声压增加. 考虑到石英音叉的本征共振频率以及 z 方向的非共振效应, 选用高度 0.6 mm 作为最优化腔高度.

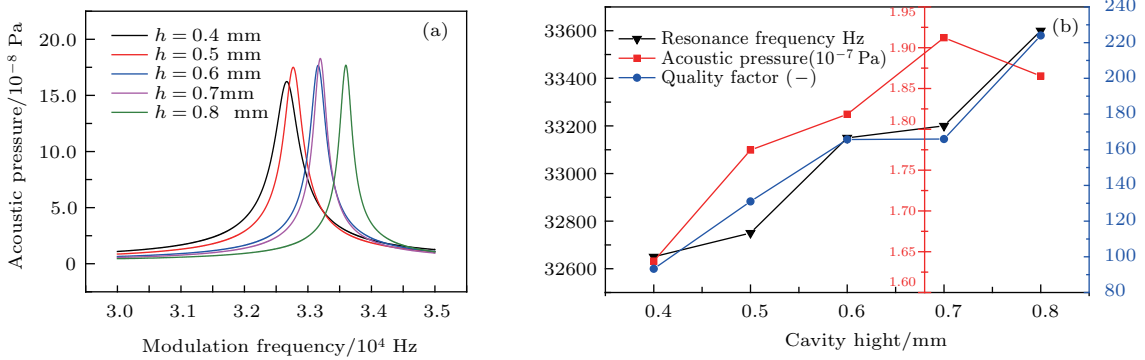


图 11 (网刊彩色) 光声腔高度对声场的影响 (a) 不同腔高度对应的声场频率响应; (b) 声压、共振频率和品质因素响应
Fig. 11. (color online) The cavity height influence on acoustic field: (a) The acoustic response with different cavity heights; (b) acoustic pressure, resonance frequency and quality factor response.

综上所述, 椭圆光声腔内声场的激发是以下两种过程共同作用的结果: 1) 腔内气体的非共振效应, 这种模态和 z 方向上尺寸相关而与激光光束入射的方向没有关系; 2) 激光光束和声场模态的空间耦合效应, 会受到激光入射角度的影响. 非共振效应主要体现在 z 方向上, 其会对腔内整个声场有贡献; 第二种情况, 激光光束和声场模态耦合会激发声波在腔体内的共振, 声波增强效果强于第一种情况. 光声腔内的品质因素相对于传统的纵向共振管有所提高, 声波进一步得到增强. 光声腔内声场可以等效为二维声场. 之前相关研究表明传统 QEPAS 技术中的共振管长度在四分之一声波波长到二分之一声波波长用以增强声波^[19]. 本研究方法和上述情况类似, 区别是共振管中声场近似等效为一维声波共振, 而本模型为二维声波共振, 椭圆长半轴确定在声波半波长附近.

总体上, 椭圆光声腔内部的声压基本不受激光入射角度的影响; 随着椭圆离心率的增加腔内声压减小, 此时长轴的尺寸对声压的影响几乎可以忽略; 腔共振频率会随着椭圆半长轴尺寸的增加而减小, 随着离心率增加而增大. 考虑到这种技术的实际应用, 我们给出了最优化的系统参数, 激光光束垂直于椭圆长轴方向入射至焦点, 椭圆光声腔的半长轴 4.9 mm, 离心率 0.7 和光声腔高度 0.6 mm.

4 实验验证

针对以上的理论分析进行实验验证, 建立基于椭圆腔共振的 QEPAS 装置如图 12 所示, 椭圆腔采用上述最优化结构参数. 使用中心波长为 1578 nm 激光器 (Tengguang Inc. C1456) 作为激发光源, 波

长调谐范围为 1576—1582 nm, 输出激光功率为 15 mW. 音叉采用 32768 Hz 的石英晶振. 信号发生器 (Agilent Model 33210 A) 输出正弦信号对激光器的电流进行调制, 调制频率为 $f_0/2$, f_0 为石英音叉的共振频率. 激光光束通过光纤聚焦器 (North Andover MA) 会聚为光斑直径 0.1 mm 的光束入射到椭圆腔内部. 音叉输出的电流信号通过前置放大器转化为电压信号, 经锁相放大器 (Stanford Model RS850) 二次谐波解调得到 QEPAS 信号值.

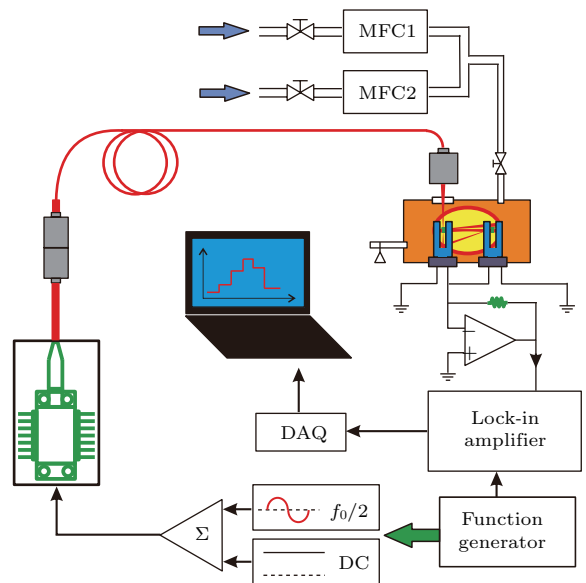


图 12 (网刊彩色) 椭圆腔 QEPAS 实验装置图 MFC, 流量控制器; DAQ, 数据采集卡
Fig. 12. (color online) Schematic of the elliptical cavity based QEPAS experimental setup: MFC, mass flow controller; DAQ, data acquisition.

对浓度为 80 ppm 的 H_2S 气体 (载气为氮气) 进行检测, 温度为室温 293 K, 压力为一个大气压, 得到 QEPAS 信号如图 13 (a) 所示. 改变 H_2S 气体

浓度从0—500 ppm, 传感器输出结果如图13(b)所示. 80 ppm浓度的H₂S气体在6336.62 cm⁻¹处的吸收线作为目标吸收线, QEPAS信号峰值达到23.6 μV, 信号的噪声水平为1.855 μV, 得到传感器的信噪比为12.698, 对应的检测极限和归一化噪声等效吸收系数分别为6.3 ppm和2.02 × 10⁻⁹ cm⁻¹W/Hz^{1/2}. 图13(b)中每一点均为10次测量结果的平均值, 获得R²为0.997, 可以看出QEPAS信号和H₂S气体浓度的线性度非常高.

在QEPAS技术中, 可以使用不同波长和功率的激光光源对目标气体检测. 表1对四种H₂S气体QEPAS检测方案进行了比较. 系统检测灵敏度由归一化等效噪声吸收系数(NNEA)表示, 其值越小, 灵敏度越高. 由表1可以看出, 在激光功率比较弱的情况下, 本研究的传感器保持了相对较高的检测灵敏度, 相当于传统QEPAS技术约3倍, 这是光场和声场共同增强作用的结果. 如果采用光纤放大器增加入射激光功率, QEPAS检测极限会进一步得到提高[20].

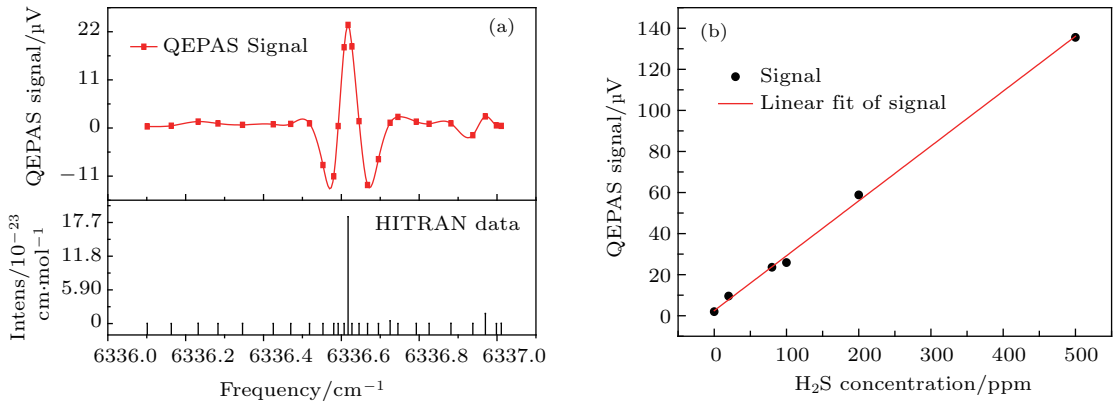


图13 实验结果图 (a) 80 ppm 浓度 H₂S 光声信号图; (b) 不同浓度气体下光声信号值

Fig. 13. The experimental results: (a) QEPAS signal values of 80 ppm H₂S; (b) QEPAS signal for different H₂S concentration values.

表1 不同 QEPAS 方法 H₂S 气体检测结果比较

Table 1. Results of H₂S detection in different kinds of QEPAS methods.

	近红外(本文)	近红外 [20]	近红外 [21]	中红外 [22]	太赫兹 [23]
QEPAS 结构	椭圆腔	离轴	同轴	同轴	裸音叉
激光功率/mW	15	1402	38.3	45	0.24
气体吸收线/cm ⁻¹	6336.6	6320.6	6320.6	1266.93	97.11
吸收线强/cm·mol ⁻¹	1.87 × 10 ⁻²²	1.11 × 10 ⁻²²	1.11 × 10 ⁻²²	1.51 × 10 ⁻²¹	1.13 × 10 ⁻²²
检测极限	6.3 ppm	734 ppb	10.1 ppm	1.3 ppm	13 ppm
归一化等效噪声吸收系数/cm ⁻¹ W·Hz ^{-1/2}	2.02 × 10 ⁻⁹	9.8 × 10 ⁻⁹	5.8 × 10 ⁻⁹	2.1 × 10 ⁻⁸	4.4 × 10 ⁻¹⁰

5 结 论

提出一种新型椭圆腔石英增强光声光谱检测方法, 对其进行理论分析并使用有限元分析方法建立计算模型. 该检测方法主要由椭圆型反射腔和两个放置在腔两端焦点狭缝上的石英音叉组成, 其可以同时增强光场和声场. 研究了腔内声

学模态、入射到光声腔内激光光束的方向、光声腔的尺寸和形状对腔内声场的影响. 通过对模型优化, 得到在一个大气压和室温条件下椭圆腔石英增强光声光谱技术的系统最优化参数. 建立实验装置对理论计算进行验证. 实验结果表明, 这种方法在激光功率为15 mW时, 对H₂S气体的检测极限达到6.3 ppm, 归一化噪声等效吸收系数为2.02 × 10⁻⁹ cm⁻¹W/Hz^{1/2}. 研究方案对高灵敏度

石英增强光声光谱技术有一定的指导意义。

参考文献

- [1] Schilt S, Kosterev A A, Tittel F K 2009 *Appl. Phys. B* **95** 813
- [2] Spagnolo V, Kosterev A A, Dong L, Lewicki R, Tittel F K 2010 *Appl. Phys. B* **100** 125
- [3] Liu K, Li J, Wang L, Tan T, Zhang W, Gao X, Chen W, Tittel F K 2009 *Appl. Phys. B* **94** 527
- [4] Köhring M, Pohlkötter A, Willer U, Angelmahr M, Schade W 2011 *Appl. Phys. B* **102** 133
- [5] Dong L, Spagnolo V, Lewicki R, Tittel F K 2011 *Opt. Express* **19** 24037
- [6] Kosterev A A, Tittel F K, Serebryakov D, Malinovsky A L, Morozov I 2005 *Rev. Sci. Instrum.* **76** 043105
- [7] Spagnolo V, Patimisco P, Borri S, Scamarcio G, Bernacki B E, Kriesel J 2013 *Appl. Phys. B* **112** 25
- [8] Elia A, Lugarà P M, Di F C, Spagnolo V 2009 *Sensors* **9** 9619
- [9] Kosterev A A, Bakhirkin Y A, Curl R F, Tittel F K 2002 *Opt. Lett.* **27** 1902
- [10] Liu K, Guo X Y, Yi H M, Chen W D, Zhang W J, Gao X M 2009 *Opt. Lett.* **34** 1594
- [11] Mordmüller M, Köhring M, Schade W, Willer U 2015 *Appl. Phys. B* **119** 111
- [12] Dong L, Wu H, Zheng H, Liu Y, Liu X, Jiang W, Zhang L, Ma W, Ren W, Yin W, Jia S, Tittel F K 2014 *Opt. Lett.* **39** 2479
- [13] Patimisco P, Scamarcio G, Tittel F K, Spagnolo V 2014 *Sensors* **14** 6165
- [14] Dong L, Kosterev A A, Thomazy D, Tittel F K 2010 *Appl. Phys. B* **100** 627
- [15] Liu K, Guo X, Yi H, Chen W, Zhang W X Gao 2009 *Opt. Lett.* **34** 1594
- [16] Miklós A, Hess P, Bozók Z 2001 *Rev. Sci. Instrum.* **72** 1937
- [17] Hong K, Kim J 1995 *J. Sound. Vib.* **183** 327
- [18] Lee W M 2011 *J. Sound. Vib.* **330** 4915
- [19] Serebryakov D V, Morozov I V, Kosterev A A, Letokhov V S 2010 *Quantum. Electron* **40** 167
- [20] Wu H, Dong L, Zheng H, Liu X, Yin X, Ma W, Zhang L, Yin W, Jia S, Tittel F K 2015 *Sens. Actuators B: Chem.* **221** 666
- [21] Kosterev A A, Dong L, Thomazy D, Tittel F K, Overby S 2010 *Appl. Phys. B* **101** 649
- [22] Siciliani d C M, Viciani S, Borri S, Patimisco P, Sampaolo A, Scamarcio G, Natale P D, Amato F D, Spagnolo V 2014 *Opt. Express* **22** 28222
- [23] Spagnolo V, Patimisco P, Pennetta R, Sampaolo A, Scamarcio G, Vitiello M S, Tittel F K 2015 *Opt. Express* **23** 7574

Theoretical research on quartz enhanced photoacoustic spectroscopy base on the resonance in an elliptical cavity*

Zhao Yan-Dong¹⁾²⁾ Fang Yong-Hua^{1)†} Li Yang-Yu¹⁾ Wu Jun¹⁾ Li Da-Cheng¹⁾
Cui Fang-Xiao¹⁾ Liu Jia-Xiang¹⁾ Wang An-Jing¹⁾²⁾

1) (Key Laboratory of Optical Calibration and Characterization, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

2) (University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(Received 27 April 2016; revised manuscript received 17 June 2016)

Abstract

As a new optical detection technique, quartz enhanced photoacoustic spectroscopy (QEPAS) has been widely used in the field of trace gas detection, which has an outstanding performance because of its advantages of extremely high sensitivity, high selectivity and compact absorption detection module. The most important factor of the detection sensitivity for QEPAS sensor is the acoustic wave enhancement. For increasing the acoustic enhancement, great effort has

* Project supported by the Natural Science Foundation of Anhui Province, China (Grant No. 1608085QD80).

† Corresponding author. E-mail: yhfang@aiofm.ac.cn

been devoted to the investigations by increasing laser power, employing tube resonators and using custom-made acoustic transducers. However, less attention has been paid to the elliptical cavity enhancement photoacoustic spectroscopy. In this work, novel quartz enhanced photoacoustic spectroscopy based on an elliptical cavity is proposed, which employs two quartz tuning forks and an elliptical cavity to further enhance the acoustic wave. The analysis and optimization of the elliptical cavity are also demonstrated.

For the elliptical cavity QEPAS sensor, the acoustic enhancement properties can be influenced by resonant modes, coupling between laser and acoustic wave, and dimension of the cavity. Based on the Helmholtz wave equation, the acoustic modes and corresponding resonance frequency can be quantized. To further investigate the acoustic wave resonance inside the cavity, the model of the cavity is established in Comsol Multiphysics software with finite element method. The acoustic pressure, quality factor can be obtained numerically by the software. With the model, parameters of the spectrophone are investigated, including the resonant modes, laser incidence angle and dimension of the elliptical cavity. As a result, the (2, 1) resonant mode is selected as the enhancement mode in the cavity, in which the maximum acoustic pressure is achieved at the ends of the long axis. By changing the incidence angle of the laser beam from 0° to 90° , the performance of the sensor is analyzed, which indicates that the laser incidence angle has little influence on acoustic properties except for 30° . This is due to the interaction of other resonant modes at this incidence angle. With the length of half-long axis varying from 4.8 mm to 5.2 mm, eccentricity from 0.5 to 0.8 and the cavity height from 0.4 mm to 0.8 mm, the resonance frequency, acoustic pressure and quality factor are studied. It reveals that there is an optimal length of half-long axis for a fixed eccentricity, and a relative large height is beneficial to enhancing the acoustic pressure. On the whole, a set of parameters is identified for the optimal sensor performance.

By optimizing and designing the spectrophone, the experiment is conducted, in which a laser (1578 nm) and H_2S as the sample gas are used. The detection limit of H_2S gas of 6.3 ppm is achieved and the corresponding Normalized noise equivalent absorption coefficient (NNEA) is $2.02 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1}\text{W}/\text{Hz}^{1/2}$. Finally, several H_2S detection results of other QEPAS methods are listed and compared for demonstrating the high detection sensitivity of the sensor. This work may contribute to the research of high sensitivity photoacoustic detection.

Keywords: quartz enhanced photoacoustic spectroscopy, elliptical resonant cavity, acoustic mode, detection limit

PACS: 07.07.Df, 07.05.Fb, 42.60.-v, 42.55.Px

DOI: [10.7498/aps.65.190701](https://doi.org/10.7498/aps.65.190701)