

基于石英音叉增强型光谱技术 (QEPAS) 的实时探测系统研究*

王贵师[†] 易红明 蔡廷栋 汪磊 谈图 张为俊 高晓明

(中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光谱学研究室, 合肥 230031)

(2011 年 10 月 9 日收到; 2011 年 11 月 2 日收到修改稿)

利用石英音叉增强型光谱技术 (QEPAS) 结合基于 Lab-VIEW 设计的数字频率锁定技术建立了一套气体实时探测系统, 该方案使用 $3f$ 信号作为误差反馈信号, 将激光器锁定在待测气体吸收峰的中心位置, 保证了长时间测量的准确度并且提高了探测效率. 实验中采用中心波长位于 $1.396\ \mu\text{m}$ 的 DFB 半导体激光器作为光源, 选择常压下空气中的水汽作为研究对象, 对系统性能进行了测试, 并对影响系统探测灵敏度的主要因素进行了分析. 实验结果表明, 该系统可以将激光器稳定在 $\pm 0.001\ \text{cm}^{-1}$ 范围内, 对激光器长时间工作时的波长漂移起到了很好的抑制作用, 系统的检测限约为 $1\ \text{ppm}$, 该方案可以直接应用于工业气监测、痕量污染物实时测量等领域.

关键词: 石英音叉增强型吸收光谱 (QEPAS), 波长调制, 软件数字锁相, 数字 PID

PACS: 07.01.Df, 07.05.Fb, 33.20.Ea, 42.55.Px

1 引言

传统的光声光谱技术^[1-4]一般通过使用声学谐振腔对声信号进行放大后用高灵敏的麦克风进行测量, 基于麦克风的光声系统虽然探测灵敏度高, 但是由于麦克风的响应频率很宽, 所以很容易受周围声波的影响, 因此限制了光声光谱技术的广泛应用, 尤其是在外场的应用. 2002 年, Tittel 和 Anatoliy 提出了一种利用共振频率为 $32.768\ \text{kHz}$ 的石英音叉来探测光声信号的新技术, 称为石英音叉增强型光声光谱技术 (QEPAS)^[5], 该技术具有体积小、可有效抑制低频和周围环境噪声等优点. 近年来 QEPAS 发展迅速^[6-11], 不仅实现了大部分小分子的高灵敏度探测如 CO_2 , CO , NH_3 , CH_4 , C_2H_4 等, 也实现了对氟利昂等大分子的探测. Anatoliy 等人还设计了多组分实时探测系统, 并成功应用于呼吸气体诊断等领域, 其核心控制部分为使用硬件设计的 CEU(control electrics unit).

本文主要介绍利用 Lab-VIEW 实现的控制模块结合 QEPAS 建立的实时探测系统, 基于 Lab-VIEW 实现的控制模块, 具有易实现、便于移植及修改等优点. 实验中以常压下空气中的水汽作为研究对象, 使用参考光路的三次谐波信号作为误差反馈信号, 将激光器锁定在水汽吸收峰的中心位置, 并通过锁相放大器实时解调出光声信号反演出气体浓度, 同时还对影响系统性能的主要因素进行了分析. 实验结果表明, 在大于 $40\ \text{h}$ 的实时测量过程中, 激光器的工作频率始终被锁定在 $\pm 0.001\ \text{cm}^{-1}$ 范围内, 很好的抑制了激光器因外界环境变化而引起的漂移, 系统检测限约为 $1\ \text{ppm}$.

2 测量及分析原理

2.1 QEPAS 技术

与传统光声测量系统的不同, QEPAS 使用石英音叉代替麦克风来探测光声信号. 到目前为

* 国家高技术研究发展计划 (批准号: 2009AA06Z204) 和中国科学院重大科研装备研制项目 (批准号: YZ200818) 资助的课题.

[†] E-mail: wulixi2004@126.com

止 QEPAS 主要有 2 种设计, 分别为如图 1 (a) 双共振管设计及图 1(b) 离轴单共振管设计 (中间开有小口), 双共振管设计由 Anatoliy 提出^[13], 是应用最普遍的一种设计, 离轴共振管设计由 Liu 等提出^[12], 由于离轴设计中声波的耦合效率要低于双共振管设计, 所以实验中我们采用的是双共振管设计.

使用 QEPAS 探测到的光声信号可以表示为^[13]

$$S(P) = KI\alpha Q(P)\varepsilon(P), \quad (1)$$

其中 K 为系统常数, I 为激光器光功率, α 为待测气体的吸收系数 (与待测气体吸收截面及浓度有关的量), $\varepsilon(P)$ 为声光转换效率, $Q(P)$ 为音叉的品质因数反映了振动能量的损耗或振动受到的阻尼的大小 (一般而言叉的 Q 值可达到 10^4 量级).

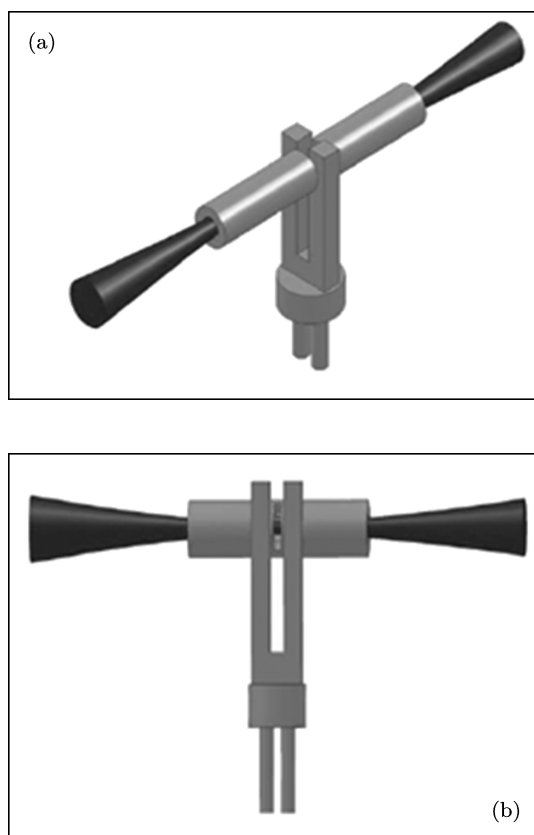


图 1 目前 2 种常用的 QEPAS 设计

由于石英音叉具有很高的 Q 值, 因此 QEPAS 能提供较高的探测灵敏度. 然而光声效应产生的光声信号有一个特点, 就是声信号的大小与调制

频率成反比关系, 所以传统的光声光谱一般把调制频率设在 1—4 kHz 范围, 而石英音叉在频率高达 32.76 kHz 处工作, 这大大消减了光声信号. 在石英音叉两端加上共振管可以有效的提高光声信号, 为了得到最佳的共振管尺寸, 我们对不同内径和不同长度的共振管进行了测试, 图 2 给出了使用单根共振管时的测量结果, 对于同一内径的管其随长度满足洛伦兹变化规律, 由图不难得到内径为 5 mm 的管具有最佳的响应带宽, 并且长度约为 4.5 mm 时信号达到最大值, 所以实验中我们选择内径为 5 mm 长度为 4.5 mm 的共振管进行测量.

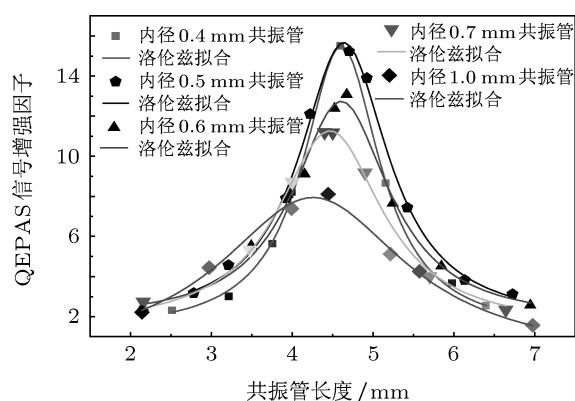


图 2 光声信号随管的内径及长度的变化

基于音叉的光声测量技术的优势在于音叉的高频响应 (32.768 kHz 附近) 及很窄的频率响应带宽 (几个 Hz), 因此对音叉的频率响应特性进行研究至关重要. 图 3(a) 为一个大气压下的石英音叉随激光器调制频率的响应曲线, 测量结果表明, 石英音叉的响应函数满足洛伦兹线型^[14], 可用下式描述:

$$S(f) = \frac{Awf}{\sqrt{(f - f_0)^2 + (wf)^2}}, \quad (2)$$

其中, f_0 为石英音叉的共振频率, w 为响应带宽 (FWHM), 定义为信号幅值下降到最大值的 $1/\sqrt{2}$ 时的频率宽度, 即其功率谱下降到最大值的一半时的频率宽度. 其值跟振动阻尼有关, 不同压力具有不同的带宽. 由于在实验中是利用波长调制的 $2f$ 信号进行浓度反演的, 所以调制频率为音叉共振频率的 $1/2$. 从图 3(b) 给出了光声信号值随正弦波调制振幅的变化趋势.

QEPAS 区别于传统光谱的另一个特点是光声效应产生的声波能量积累中剧烈震动的音叉上, 而非积累在声学谐振器内. QEPAS 积累声能的时间可

以表示为

$$t = \frac{Q}{f}, \quad (3)$$

其中 Q 为音叉的品质因数, f 为共振频率, 因此常压下石英音叉积累声能所需要的时间约为 0.3 s (常压下 Q 值以 10^4 计, 共振频率为 32.768 kHz), 同时这也是 QEPAS 系统的最小响应时间, 当低于该时间时系统尚未达到稳定. 以此为准, 实验中我们采用的采样时间间隔为 0.5 s.

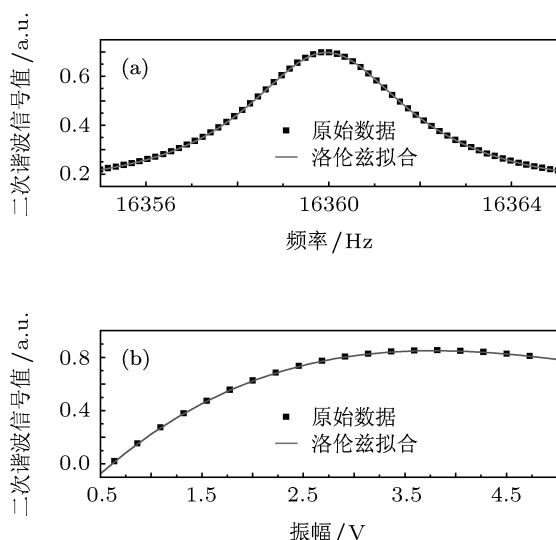


图3 常压下水汽的光声信号随频率和振幅的变化

对于 QEPAS 而言, 如果电路设计良好且没有引入电子噪声的话, 系统噪声的主要来源为音叉的热噪声, 即当系统噪声等于石英音叉的热噪声时, 可以认为系统已达到最佳性能, 石英音叉的热噪声由下式给出:

$$\sqrt{\langle V_N^2 \rangle} = \sqrt{\Delta f R_g} \sqrt{\frac{4k_B T}{R}}, \quad (4)$$

其中 $\sqrt{\langle V_N^2 \rangle}$ 是噪声电压的方均根, Δf 是探测带宽, T 为温度, k_B 为玻尔兹曼常数, R_g 为电路中的增益电阻, R 为石英音叉等效电路的阻抗. 石英音叉的热噪声是无法消除的, 是 QEPAS 技术的探测极限值, 因此这也是判定系统是否调节好的标准之一.

2.2 数字频率锁定技术

在激光器稳频过程中, 通常利用奇次谐波的过零点特性^[15]将偏离的激光波长锁定在吸收线中心

位置, 由于一次谐波信号在吸收线中心位置有偏移并且受光强影响, 所以实验中采用三次谐波信号作为鉴频信号, 图4给出了利用 Lab-VIEW 设计的数字锁相解调出的空气中水汽吸收信号的二、三次谐波 (谐波探测方面的理论公式可以参考文献 [16], 在此不再赘述), 其中框内标注的区间为锁定区间.

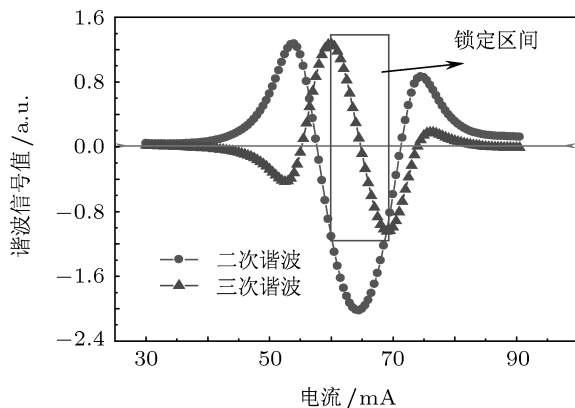


图4 空气中水汽的二、三次谐波信号

实验中我们采用 Lab-VIEW 设计的 PID 控制算法来实现频率锁定, 使用三次谐波值与设定值 (set point) 之差作为误差信号, 由该误差信号的比例、积分线性组合计算出激光器的工作电流, 利用 GPIB (General-Purpose Interface Bus) 控制温度电流控制器 (LDC-3724) 进行反馈控制. 数字 PID 控制器是由模拟 PID 控制器发展而来的, 适合用计算机来实现, 具有调整灵活、长期可靠等优点. 当采样周期足够小时, 其控制过程可与模拟控制十分接近.

3 实验装置及设计

实验装置如图5所示, 光源采用中心波长位于 1.396 μm 处的二极管激光器 (NTT, electronics corporation), 激光器线宽为 2 MHz, 由 LDC-3724 温度电流控制器 (ILXLightwave Inc) 控制, 函数发生器产生相应频率和幅值的正弦波对激光器进行调制. 输出激光由光纤分束器分成 99:1 的二束光, 1%的光通过程长为 10 cm 的参考池后由探测器 (New Focus Inc. 2011FC-M) 探测, 99%的光经光纤隔离器和聚焦透镜后耦合到共振管中, 使得光

通过音叉中心且离音叉上表面 0.8 mm 处 (信号极大值位置, 可参考文献 [6]), 光声信号产生的声波激发石英音叉共振, 由于石英音叉具有压电效应, 石英音叉共振后将产生压电电流. 石英音叉产生的压电电流用一个自制的、反馈电阻为 2 M 的运放电路进行放大并转换为电压信号, 然后再用信号放大器 (EG&G, Model 5113) 对信号进行再

次放大和滤波. 经信号放大器放大后的信号用锁相放大器 (Stanford Research Systems, Model SR 830 DSP, TC 1S, Filter Slope 18db/oct) 进行 $2f$ 解调, 即得到 QEPAS 信号. 锁相解调后的 QEPAS 信号通过安装有数据采集卡的电脑进行采集和处理, 其中锁相和激光控制器由电脑通过 GPIB 卡进行自动控制, 函数发生器由 USB-RS 232 进行控制.

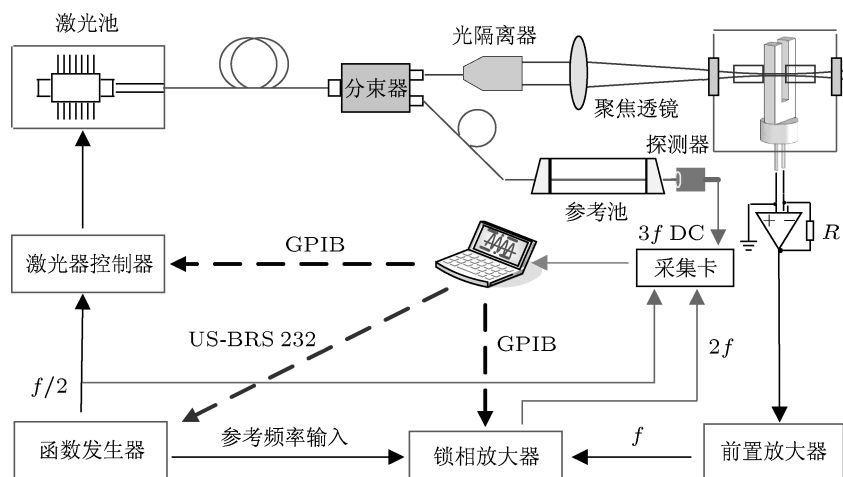


图5 实验装置示意图

系统的软件设计流程如图 6 示, 主要包括电流、频率及幅值扫描模块、数字 PID 控制模块、软件数字锁相模块、Kalman 实时滤波模块以及定时器模块. 扫描模块主要通过 PC 控制各仪器实现, 从而得到系统最佳工作参数, 并给出锁定区间 (locking range); 数字锁相模块主要负责同步解调参考池的三次谐波信号, 并给出参考池的 DC 信号, 用于消除测量过程中激光器中心光强的变化, 该模块的设计原理如图 7 所示, 由采集卡采集 PD 的输出信号及函数发生器的参考输出信号, 利用 PLL 模块追踪参考信号的频率及相位信息并生成 n 倍频信号, 与 PD 输出的已调制信号进行乘法运算, 然后通过等波纹低通 FIR 滤波器, 对滤波后结果取平均作为当前 n 次谐波值; 数字 PID 控制模块负责将实时三次谐波信号转为电流控制信号, 利用 GPIB 控制 LDC-3724 实现对激光器的反馈从而实现激光器频率的锁定, 实验中使用凑试法得到 P 及 I 参数, 分别为 1 (下降沿为正、上升沿为负) 和 0.01, 时间常数为 0.5 s. Kalman 滤波模块主要负责对数据进行实时滤波 [17], 并且该模块设有开关. 考虑到音叉

的共振频率可能会受到周围环境的影响, 我们在程序中加入了定时器模块, 定期对音叉的共振频率进行校正, 实验中选择的时间间隔为 1 h.

4 测量结果及分析

实验中, 我们选择了波数为 $7161.4101 \text{ cm}^{-1}$ 的水汽吸收线对激光器进行锁定及浓度反演, 常温下 (296 K) 其线强为 $1.174 \times 10^{-20} \text{ cm}^{-1}/(\text{mol} \cdot \text{cm}^{-2})$, 并且周围其他分子如 CH_4 , C_2H_2 等由于含量太低及线强太弱可以忽略不计. 图 8 给出了 7158—7169 cm^{-1} 范围内空气中分子的吸收状况模拟, 红框标注的为所选谱线. 同时为了校正因温度改变而引起的线强变化, 我们对所选谱线的线强随温度的变化进行了模拟, 并与数据库进行了比较如图 9, 在系统中加入温度传感器后便可对测量结果进行实时校正.

图 10 给出了数字 PID 的锁定过程, 在大于 40 h 的时间内, 归一化的 $3f$ 信号值始终被控制在 ± 0.01 内, 使用定标公式对其波数值进行反推, 可以确

定数字 PID 将激光器锁定在约为 $\pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$ 的范围内, 能很好的满足我们对于长时间实时探测的要求. 图 11 给出的是激光器自由运转及使用数字 PID 控制的比较, 从图中可以明显看出, 自由运转时激光器的频率波动约为 0.01 cm^{-1} , 加入 PID 后可以保证激光器长时间稳定工作在 $\pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$ 以内, 因此该方法很好地抑制了

激光器波长的漂移. 如果要进一步提高激光器稳定度, 可以选择 Doppler 加宽的吸收信号作为鉴频信号, 稳定度可在此基础上提高近 1 个量级, 但是对于长时间监测而言, 锁定区间过小会导致系统失锁, 并且其吸收线位置也存在压力偏移问题, 所以实验中我们采用了常压下的吸收信号进行锁定.

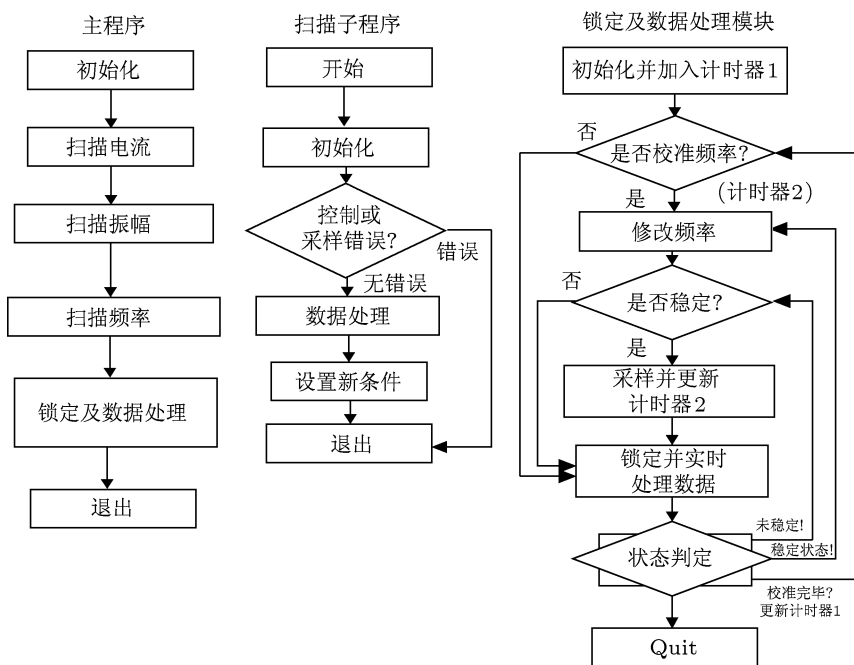


图 6 软件设计流程图

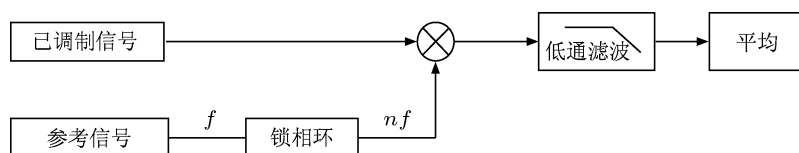


图 7 软件数字锁相原理示意图

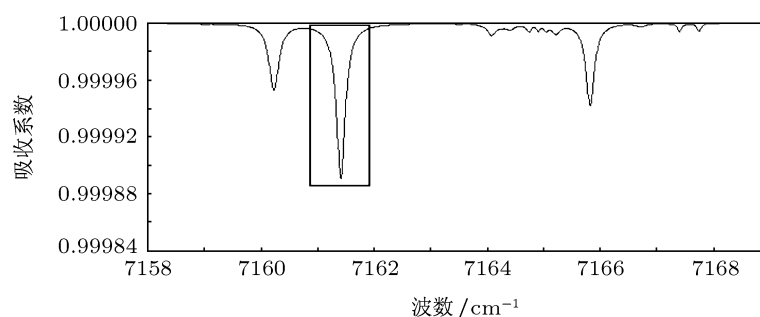


图 8 7163 cm^{-1} 附近空气中分子的吸收状况

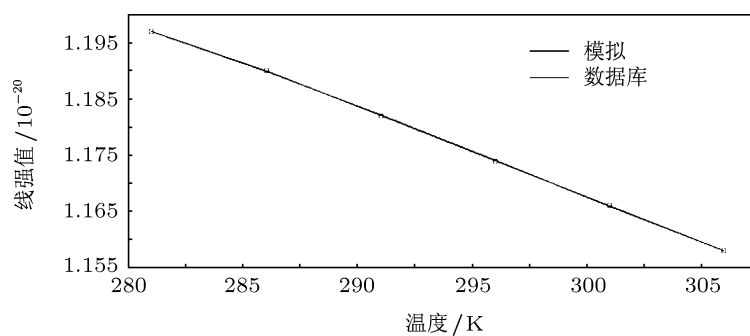


图9 所选谱线的线强值随温度的变化

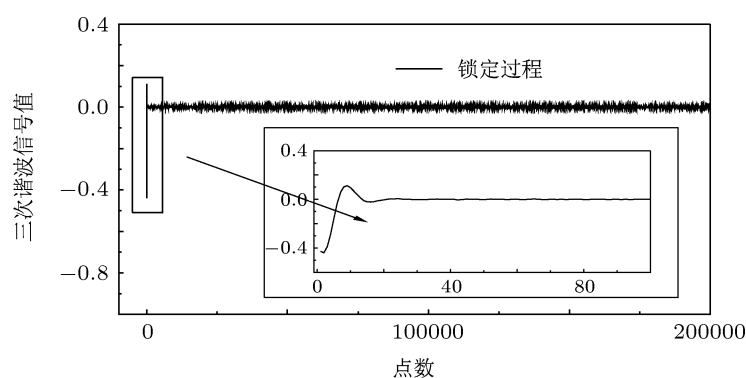
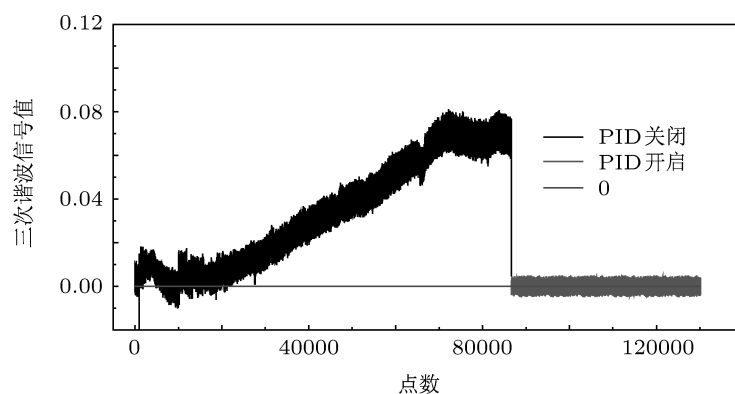


图10 PID 控制过程

图11 激光器自由运转及开启PID的 $3f$ 信号值对比

对于频率稳定后的系统,除了激光器和探测器本身的噪声限制外,影响其探测灵敏度主要因素为激光器输出光强的抖动,在实时测量过程中,可以用锁相放大器解调出的光声实时信号值除以参考信号的DC值以消除激光器输出光功率的抖动.实验过程中为了准确反演出水汽的浓度值,我们对不同浓度的水汽进行了测量,使用直接吸收

信号来标定光声信号.首先将激光器调节到待测吸收峰附近,使用电流扫描确定吸收区间,利用数字PID将其锁定在吸收峰上,并给出当前已消除光强的光声信号值,然后将正弦调制信号替换为频率为50 Hz、幅值为2 V且无中心偏置的三角波,对其直接吸收信号进行测量,图12(d)给出了不同浓度时的光声信号与对应直接吸收之间的线性关系

图. 为了测试系统性能, 我们对实验室内水汽进行了大于 40 h 的连续监测, 图 12(a) 给出的为 3f 鉴频信号的实时结果, 在测量过程中可以看出 3f 反馈信号始终在 ± 0.01 范围内, 即激光器始终被锁定在 $7161.4101 \pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$ 的范围内. 图 12(c) 给出了水汽连续监测结果, 由于从 3 月 12 日下午开始下雨, 导致实验室内水汽浓度持续上升, 浓度变化

范围为 0.51%—1.15%, 与实际状况相符 (与温湿度计比较). 图 12(b) 给出的是单次扫描时的光声信号, 通过数据分析我们可以得到光声信号值及噪声水平 (没有吸收时的探测结果, 红框标注区域), 2 者相除可得信噪比约为 8400, 使用直接吸收标定的浓度值为 0.85%, 以信噪比为 1 时的探测结果作为探测极限, 则可以得出系统的探测极限约为 1 ppm.

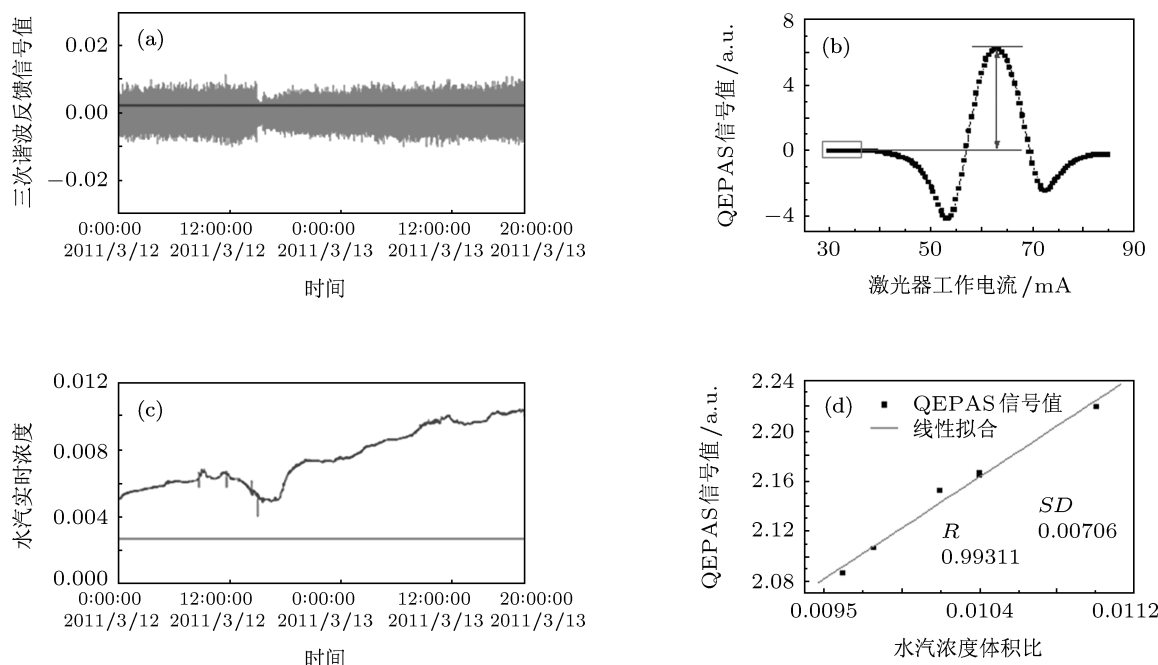


图 12 (a) 为 3f 实时结果; (b) 为逐点扫描得到的光声信号; (c) 为水汽实时测量结果; (d) 为直接吸收计算的浓度与光声信号的线性关系

5 结 论

本文主要介绍了 QEPAS 技术及 Lab-VIEW 设计的数字频率锁定技术在气体实时探测中应用, 该方案具有体积小、探测效率高、长期稳定等优点. 通过使用参考池样品的三次谐波信号及数字 PID

技术将激光频率锁定在分子吸收峰位置上, 频率稳定度达到 $\pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$, 有效抑制了激光器的频率漂移. 使用 QEPAS 技术进行浓度反演, 系统达到了较高的探测灵敏度 (系统检测限约为 1 ppm). 该技术可以直接应用于工业气实时监测、痕量污染物在线分析^[18–20]等领域, 具有广阔的应用范围.

- [1] Wysocki G, Bakhirkin Y, So S, Tittel F K, Hill C J, Yang R Q, Fraser M P 2007 *Appl. Opt.* **46** 8202
- [2] Cristescu S M, Persijn ST, Hekkert S T, Harren F J M 2008 *Appl. Phys. B* **92** 343
- [3] McCurdy M R, Bakhirkin Y, Wysocki G, Lewicki R, Tittel F K 2007 *J. Breath Res.* **1** 014001
- [4] Linnerud I, Kaspersen P, Jager T 1998 *Appl. Phys.* **67** 297
- [5] Kosterev A A, Bakhirkin Y A, Curl R F, Tittel F K 2002 *Opt. Lett.* **27** 1902
- [6] Kosterev A A, Tittel F K 2004 *Appl. Opt.* **43** 6213
- [7] Lewicki R, Wysocki G, Kosterev A A, Tittel F K 2007 *Appl. Phys. B* **87** 157
- [8] Kosterev A A, Mosely T S, Tittel F K 2006 *Appl. Phys. B* **85** 295
- [9] Schilt S, Kosterev A A, Tittel F K 2009 *Appl. Phys. B* **95** 813
- [10] Kosterev A A, Bakhirkin Y A, Tittel F K, McWhorter S, Ashcraft B 2008 *Appl. Phys. B* **92** 103

- [11] Liu K, Li J S, Wang L, Tan T, Zhang W J, Gao X M, Chen W D, Tittel F K 2009 *Appl. Phys. B* **94** 527
- [12] Liu K, Guo X Y, Yi H M, Chen W D, Zhang W J, Gao X M 2009 *Optics Letters* **34** 1594
- [13] Kosterev A A, Tittel F K, Serebryakov D V, Malinovsky A L, Morozov I V 2005 *Rev. Sci. Instrum.* **76** 043105
- [14] Grober R D, Acimovic J, Schuck J, Hessman D, Kindlemann P J, Hespanha J, Morse A S, Karrai K, Tiemann I, Manus S 2000 *Rev. Sci. Instrum.* **71** 2776
- [15] Dong L, Ma W G, Yin W B, Li C Y, Jia S T 2005 *Journal of Optoelectronics Laser* **16** 255 (in Chinese) [董磊, 马维光, 尹王保, 李昌勇, 贾锁堂 2005 光电子激光 **16** 255]
- [16] Reid J, Labrie D 1981 *Applied Physics B* **26** 203
- [17] Haris R, Clinton B C, Russell E W 1994 *Appl. Opt.* **33** 5506
- [18] Kan R F, Liu W Q, Zhang Y J, Liu J G, Dong F Z, Gao S H, Wang M, Chen J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1927 (in Chinese) [阚瑞峰, 刘文清, 张玉均, 刘建国, 董凤忠, 高山虎, 王敏, 陈军 2005 物理学报 **54** 1927]
- [19] Zhang Z R, Dong F Z, Zhang S, Zhang Y J, Kan R F 2008 *Ludong University Journal* (Natural Science Edition), **24** 142 (in Chinese) [张志荣, 丁宗富, 丁宗玲, 董凤忠, 张帅, 张玉钧, 阚瑞峰 2008 鲁东大学学报 **24** 142]
- [20] Wang L, Tan T, Cao Z S, Wang G S, Zhang W J, Gao X M 2010 *Spectroscopy and spectral analysis* **30** 2192 (in Chinese) [汪磊, 谈图, 曹振松, 王贵师, 张为俊, 高晓明 2010 光谱学与光谱分析 **30** 2192]

Research on the real-time measurement system based on QEPAS*

Wang Gui-Shi[†] Yi Hong-Ming Cai Ting-Dong Wang Lei Tan Tu
Zhang Wei-Jun Gao Xiao-Ming

(Laboratory of Environmental Spectroscopy, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(Received 9 October 2011; revised manuscript received 2 November 2011)

Abstract

A real-time measurement of gases based on QEPAS is introduced. For eliminating fluctuation of laser, a simple method, in which a digital PID algorithm and a software lock-in amplifier designed by using Lab-VIEW are employed, is utilized to lock the laser to the center of the absorption line. In order to test the system, an absorption line of water vapor near 1.396 μm is chosen by using a fiber-coupled distributed feedback (DFB) diode laser. An over-40-hours continuous measurement is implemented, and the relevant results are presented and discussed. The detection limit of the system is 1 ppm. This method can also be used to measure the trace gases and monitor the industry gases.

Keywords: quartz enhanced photo-acoustic absorption spectroscopy (QEPAS), wavelength modulation spectroscopy (WMS), software lock-in amplifier, digital PID

PACS: 07.01.Df, 07.05.Fb, 33.20.Ea, 42.55.Px

* Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2009AA06Z204), and the Foundation of Chinese Academy of Sciences (Grant No. YZ200818).

[†] E-mail: wulixi2004@126.com