

文章编号 1004-924X(2026)10-1526-09

拍频-光致热弹光谱传感器用于甲烷气体 快速检测

尚智金*, 刘辰华, 杨子珍, 邱选兵, 李传亮*

(太原科技大学 应用科学学院, 山西省精密测量与在线检测装备工程研究中心, 山西 太原 030024)

摘要: 光致热弹光谱(LITES)技术得益于其高灵敏度和高选择性等优势在痕量气体检测领域得到了广泛的应用,该技术使用小体积低成本的石英音叉替代了价格高昂的光电探测器作为检测元件,通过检测激光与待测气体相互作用后光强的变化量来反演气体浓度信息。为了提高LITES传感系统的检测灵敏度,本文设计了一款有效光程长度为17 m的Herriot型多通池,并且提出了拍频(BF)调制解调方案来缩短传感系统的响应时间。研发的BF-LITES传感系统能够在800 ms的测量周期内完成整个信号的测量,与传统LITES系统20 s的测量周期相比,其信号测量周期缩短了25倍。实验搭建了BF-LITES传感系统,通过对调制频率、调制深度和扫描速率等参数的优化,最终测得对甲烷气体的检测灵敏度为256.74 ppb。经过Allan方差分析后可知,当平均时间增加至81 s时检测灵敏度可以提升至6.71 ppb。与传统LITES传感系统相比,设计的BF-LITES传感系统具有更高的检测灵敏度和更快的响应时间,在环境监测、工业过程控制和医疗诊断等领域有着较高的应用潜力。

关键词: 光致热弹光谱;拍频调制解调技术;Herriot型多通池;石英音叉

中图分类号: O433.1 **文献标识码:** A

doi: 10.37188/OPE.20263410.1526

CSTR: 32169.14.OPE.20263410.1526

Beat-frequency laser-induced thermoelastic spectroscopy sensor for rapid methane detection

SHANG Zhijin*, LIU Chenhua, YANG Zizhen, QIU Xuanbing, LI Chuanliang*

(School of Applied Sciences, Taiyuan University of Science and Technology, Taiyuan 030024)

* Corresponding author, E-mail: zjshang@tyust.edu.cn; clli@tyust.edu.cn

Abstract: Laser-induced thermoelastic spectroscopy (LITES) technology has been widely used in trace gas detection due to its high sensitivity and selectivity. This technology uses a small, low-cost quartz tuning fork instead of an expensive photodetector as the detection element, retrieving gas concentration information by detecting the change in light intensity after the interaction of a laser with the analyte gas. To improve the detection sensitivity of the LITES sensing system, a Herriot-type multipass cell with an effective optical path length of 17 m was designed. Additionally, a beat frequency (BF) modulation and demodulation scheme was proposed to shorten the response time. The developed BF-LITES sensing system

收稿日期:2026-04-08;修订日期:2026-04-17.

基金项目:国家自然科学基金(No. 62505212; No. 62475182);中央引导地方科技发展资金项目(No. YDZJSX2025C026);山西省高等学校科技创新项目(No. 2025L060);山西省回国科教创新资助项目(No. 2025-044);山西省重点研发计划(No. 202302150101006; No. 202402150301012)

can complete the measurement of the entire signal within a measurement cycle of 800 ms, which shortens the signal measurement cycle by a factor of 25 compared with the 20 s measurement cycle of a traditional LITES system. The BF-LITES sensing system was experimentally constructed, and through optimization of parameters such as modulation frequency, modulation depth, and scan rate, the final measured detection sensitivity for methane gas was 256.74 ppb. Allan variance analysis showed that the detection sensitivity increased to 6.71 ppb when the averaging time was increased to 81 s. Compared with traditional LITES sensing systems, the designed BF-LITES sensing system has higher detection sensitivity and faster response time, and has high application potential in environmental monitoring, industrial process control, and medical diagnostics.

Key words: laser-induced thermoelastic spectroscopy; beat frequency modulation and demodulation technology; Herriot-type multi-pass cell; quartz tuning fork

1 引言

甲烷(CH_4)是一种无色、无味的温室气体,具有显著的蓄热能力,其百年全球变暖潜能值是二氧化碳(CO_2)的 28 倍^[1]。自工业革命以来,大气中 CH_4 浓度急剧上升,从 19 世纪初的约 750 ppb 增至 2019 年的超过 1 875 ppb,近二十年来以每年约 5 000 万吨(Mt)的速度累积^[2]。观测到的排放量增长主要归因于人类活动和气候环境,包括化石燃料开采、水稻种植、垃圾填埋、畜禽粪便管理以及废水处理等^[3]。此外,当空气中的 CH_4 浓度达到 4.5%~15% 时,会形成爆炸性混合物,从而在密闭空间内构成严重的爆炸风险^[4]。因此,对大气 CH_4 浓度进行长期、原位的监测,对于缓解温室效应以及保障工业生产与日常生活环境的安全至关重要。

人们已经开发并利用多种技术来检测大气中 CH_4 浓度,包括化学发光法、纳米材料传感法、质谱法和气相色谱法^[5-8]。然而,这些方法在长期测量大气甲烷时均存在一定的局限性,包括灵敏度有限、易受环境干扰、运行成本高以及需要复杂的仪器或频繁维护。近年来,可调谐二极管激光吸收光谱(Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS)技术因其操作简便、稳定性高以及检测灵敏度与气体弛豫速率无关等优点,成为一种极具吸引力的光谱技术^[9-12]。Cui 等人开发了一种基于 TDLAS 的大气 CH_4 传感器,该传感器设计了有效光程为 4.2 m 的微型多通池(Multi-Pass Cell, MPC),并实现了 117 ppb 的最低检测限^[13]。Xue 等人报道了一种基于 TD-

LAS 技术的 CH_4 传感器,该传感器采用体积约为 7 mL、光程为 2.45 m 的紧凑型多通池,实现了 288 ppb 的最低检测限^[14]。Liang 等人报道了一种基于双通道 MPC 的 TDLAS 传感器,多通池的有效光程为 35.15 m,用于同时检测 CH_4 和乙炔(C_2H_2)气体,测得 CH_4 的最低检测限为 132.08 ppb^[15]。传统 TDLAS 技术的核心部件是光电探测器,其设计用于检测不同波长范围的激光能量。例如,由砷化镓(InGaAs)材料制成的光伏探测器主要用于近红外区域,碲镉汞(HgCdTe)探测器用于中红外区域,以及用于远红外波段的热释电探测器。这类光电探测器具有较高的响应度,但其狭窄的工作光谱范围、高昂的价格以及较大的体积限制了其在实际现场应用中的推广。

光致热弹性光谱技术(Laser-Induced Thermoelastic Spectroscopy, LITES)自 2018 年首次报道以来便得到了迅速发展。LITES 技术作为 TDLAS 技术的一种替代方案,其中一种体积小、成本低廉且具有宽波长响应范围的石英音叉(Quartz Tuning Fork, QTF)被用来替代传统的光电探测器,以测量光吸收强度的变化^[16-32]。当一束经过调制的激光穿过待测气体时,气体分子会选择性地吸收特定波长的光,透射的激光随后照射到石英音叉表面,音叉吸收光能并产生周期性的热形变,进而驱动音叉振臂在其共振频率下稳定振动。由于音叉具有的压电效应,其振臂的机械形变量被转化为电信号,通过对电信号幅值进行反演即可得到待测气体的浓度信息。

LITES 技术的核心原理是基于比尔朗伯定

律,因此可以通过增加激光与待测气体的相互作用路径长度来提高系统的检测灵敏度。2022年,Liu等人设计了一个有效光程为10 m的Herriot型多通池来增强光学吸收,同时采用高功率 $2.33\ \mu\text{m}$ 的二极管激光器将LITES传感器对 CH_4 气体的检测灵敏度提高2.35倍^[22]。2025年,Ma等人使用具有密集光斑图案和约80 m有效光程的多通池来增强LITES信号强度,实现了对 CH_4 气体的最低检测限为 $8.42\ \text{ppb}$ ^[23]。2025年,Sun等人报道了一种基于双光路多通池的高灵敏LITES传感器,在两个双凹球面镜间实现了14环交错的光斑图案,总有效光路长度为26.7 m,对 CH_4 气体的检测极限可以达到 $50.9\ \text{ppb}$ ^[24]。

目前LITES检测系统受限于传统的调制解调方案,通常需要大于10 s的响应时间才可以获得一个完整的LITES信号^[25]。2017年,Wu等人曾提出了一种基于快速波长扫描方案的拍频石英增强光声光谱(Beat-Frequency Quartz-Enhanced Photoacoustic Spectroscopy, BF-QEPAS)技术,该技术利用非共振激励下的拍频解调以及石英音叉的瞬态响应,实现了毫秒级的响应^[26]。2025年,Simon等人通过改变激光的调制序列相位来相干控制和抑制音叉的振动,从而在3 s内获得覆盖3 050 nm至3 450 nm的完整 CH_4 光谱^[29]。以上研究表明,通过对激励光源施加快速的波长扫描信号,能够利用拍频(Beat-Frequency, BF)调制解调方案检测石英音叉的瞬态响应,从而在保持高检测灵敏度的同时显著缩短系统的响应时间。

因此,本文将拍频调制解调方案与LITES传感器融合,通过非谐振频率解调石英音叉对外部激励的瞬态响应信号,可同步测定石英音叉的品质因数、共振频率及待测气体浓度,既规避了传统LITES技术中繁琐的频率校准流程,又将系统响应时间优化至毫秒量级。为了进一步提高BF-LITES传感器的检测灵敏度,设计了一款具有17 m有效光程的气体吸收池。此外,吸收池被设计为腔镜分离结构,能够有效地避免环境中污染物对腔镜的污染。通过优化调制频率、调制深度及扫描速率等参数最大化BF-LITES信号幅度。实验结果表明,当系统的平均时间为81 s时,对 CH_4 气体的最低检测限可低至 $6.71\ \text{ppb}$ 。

2 BF-LITES技术的基本原理

在LITES传感系统中通常使用商用的石英音叉作为光电换能器,具有体积小、成本低且无波长选择性等特点。石英音叉可以被等效为RLC串联谐振电路并使用Butterworth-Van Dyke电学模型对其相关特性进行分析:

$$L \frac{d^2 q}{dt^2} + R \frac{dq}{dt} + q \frac{1}{C} = U(t), \quad (1)$$

其中: L 为石英音叉的等效电感, C 为等效电容, R 为等效电阻,电荷 q 和电压 $U(t)$ 分别代表了石英音叉振臂的位移量和光源驱动力。对该等式进行求解可知,石英音叉的振臂在光源驱动力作用下存在两种运动模式,这意味着石英音叉对外界激励存在两种模式的响应:

$$q(t) = q_s(t) + q_t(t), \quad (2)$$

其中, $q_s(t)$ 和 $q_t(t)$ 分别代表了石英音叉的稳态响应模式和瞬态响应模式。

在传统LITES系统中,通过向激光器施加一个缓慢变化的三角波电流信号使得激光波长缓慢通过待测气体的目标吸收峰,在这个过程中产生的激光强度变化对石英音叉的热弹效应是持续且缓慢变化的。为适应这种激光缓慢扫描模式,传统LITES系统在探测石英音叉的压电信号时通常采用300毫秒至1秒的积分时间,而长时间的积分将使石英音叉对激励信号瞬态响应产生的电信号平均为零。根据等式(2)可知,在系统积分时间足够短的情况下,石英音叉对外界激励的瞬态响应将占主导,由此产生的压电信号与外部激励的强度也具有正相关的关系,因此,理论上本文可以通过对石英音叉瞬态响应压电信号的探测实现对痕量气体浓度的检测。

在BF-LITES传感系统中,激励光源的驱动电流被快速扫描,与气体相互作用的激励光波长将快速扫过气体的特征吸收谱线,在此过程中光吸收在石英音叉上引起短暂的热弹性激发,使得石英音叉振臂的响应表现以瞬态阻尼振荡为主。由于探测该信号时使用的积分时间很短,石英音叉稳态响应无法在如此短时间内实现能量的积累。因此,此时石英音叉的压电输出信号可以表示为:

$$V(t) = V_0 e^{-\frac{t}{\tau}} \cos(2\pi f_0 t - \phi_0), \quad (3)$$

其中: V_0 为初始幅度,与吸收的光功率和光热电转换增益成正比, τ 为衰减时间, f_0 为石英音叉的谐振频率, ϕ_0 为初始相位。在传统 LITES 传感系统中会采用二次谐波解调方案对石英音叉的压电信号进行处理,而在 BF-LITES 系统中,激光器的调制频率被设置为与石英音叉共振频率存在一定的频率差以产生有效的拍频信号,同时以一次谐波解调方案对压电信号进行解调。解调过程中,石英音叉产生的压电信号与调制频率为 f 的参考信号进行相乘,然后通过低通滤波器,即可获得 BF-LITES 信号:

$$S_{BF}(t) = \frac{V_0}{2} e^{-\frac{t}{\tau}} \cos [2\pi(f_0 - f)t - \phi_0]. \quad (4)$$

由于拍频信号的频率在数值上等于产生这一拍频信号的两组信号的频率差,因此石英音叉的谐振频率 f_0 可由拍频信号相邻峰值或谷值之间的时间间隔 Δt 与调制频率 f 计算得到:

$$|f_0 - f| = 1/\Delta t = \Delta f. \quad (5)$$

此外,通过拟合 BF-LITES 信号的衰荡时间可以获得石英音叉的响应时间 τ ,基于石英音叉响应时间和品质因数 Q 之间的关系即可得到:

$$Q = \pi f_0 \tau. \quad (6)$$

综上,通过对 BF-LITES 信号的单次测量,即可反演得到目标气体的浓度、石英音叉的品质因数和谐振频率等信息,从而在快速测量目标气体浓度的同时获取校准系统所需的电学参数的实时数值并自动完成相关实验参数的校准,真正实现了对痕量气体浓度的快速、连续监测。

3 实验系统搭建

由比尔朗伯定律可知,增加待测气体与激光相互作用路径长度可以有效提高 LITES 技术的检测灵敏度,因此本文设计了一种有效光程长度达 17 m 的 Herriott 型多通池。为避免环境颗粒物和杂质对反射镜的污染,该多通池采用腔镜分离结构,两个反射率为 99.9% 的反射镜放置在了圆柱形气体吸收腔的两侧。气体吸收腔长度为 260 mm,直径为 50 mm,对应的吸收腔容积为 2.04 L。反射镜的直径为 50.8 mm,曲率半径为 1 000 mm。通过调整激光的入射

角,可以在多通池内经过 65 次的反射次数,两个反射镜的间距为 0.28 m,单个镜面上共有 32 个光斑,且光斑之间没有重叠,结合吸收腔的长度可以计算得到多通池的有效光程长度为 17.16 m。将波长为 650 nm 的红色激光引入多通池内,反射镜镜面上的光斑图案如图 1 插图所示。腔镜分离式多通池的实物照片也展示在了插图中,这种紧凑的结构设计在有限的空间内提供了激光与待测气体更长的相互作用路径长度,从而提高检测灵敏度。

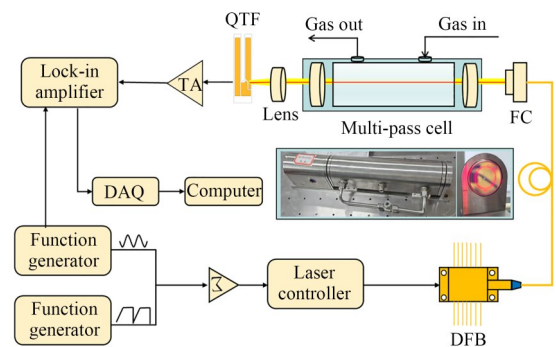


图 1 BF-LITES 传感系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the BF-LITES sensing system

基于 Herriott 型多通池的 BF-LITES 传感系统如图 1 所示,该系统采用中心波长为 1 653.72 nm 的分布式反馈激光器(富泰科技,GXG-DFB-1653-BF)作为激光光源,选择 CH_4 在 $6\,046.96\text{ cm}^{-1}$ 处的吸收峰作为目标谱线。商用激光控制器(Thorlabs, TED200C; Thorlabs, LDC202C)用于调节激光器的温度和电流,从而精确控制其输出波长。由于拍频调制解调方案被用于本实验中,在激光器驱动电流中增加了梯形波扫描信号和正弦波调制信号。梯形波的上升沿被用来扫描 CH_4 的吸收峰,梯形波的直流偏置作为等待时间用于获得完整的拍频信号。激光器发出的激光束首先经光纤准直器准直,然后传输到 Herriott 型多通池内。出射光束经过焦距为 30 mm 的 CaF_2 透镜被聚焦到商用石英音叉的表面。由石英音叉产生的压电信号经自制跨阻抗放大器放大后,由锁相放大器进行一次谐波解调,最后采用商用数据采集卡采集 BF-LITES 信号并进行后续处理。实验中选用的石英音叉为共振频率为 32.7 kHz 的商用音叉式石英晶振。由于对石

英音叉的瞬态响应探测需要较宽的探测带宽,锁相放大器的积分时间被设置为 30 ms,扫描斜率设置为 12 dB,对应的探测带宽为 4.17 Hz。此外,气路系统与 Herriot 型多通池内的气体吸收腔相连,包含了浓度为 1% 的标准 CH₄/氮气(N₂)混合气、标准纯氮气、配气模块、压力控制器(航伽,HPM18V)、质量流量计(Alicat Inc., M 系列)以及气泵,以实现气体吸收腔内 CH₄ 气体浓度、压强和流速的精确调控。

4 BF-LITES 系统性能优化和评估

为了评估 BF-LITES 传感系统的性能,将经认证的 200 ppm CH₄/N₂ 混合物引入多通池中。拍频调制解调方案中,调制频率为 32 772.1 Hz 的正弦波调制信号与梯形波叠加作为激光器的电流驱动信号,其中梯形波的上升时间(T_1)被设置为 50 ms,等待时间(T_2)被设置为 750 ms,如图 2(a)所示。由于一次谐波解调后的信号幅值最高,因此选择一次谐波对石英音叉产生的压电信号进行解调,获得了如图 2(b)所示的 BF-LITES 信号。信号由八个不同的峰组成,每个峰的幅度与目标气体浓度呈良好的线性关系。由于信号幅度与系统的检测灵敏度呈正相关,因此选择幅度最高的峰作为后续实验的测量点,如图 2(b)中的峰 P2 所示。通过对六个峰 P2, P3, P4, P5, P6, P7 和 P8 进行指数拟合,确定衰减时间 τ 为 0.146 s。相邻两个峰之间的时间间隔 Δt 测量为 0.07 s。根据公式(5)和公式(6),计算得出标准

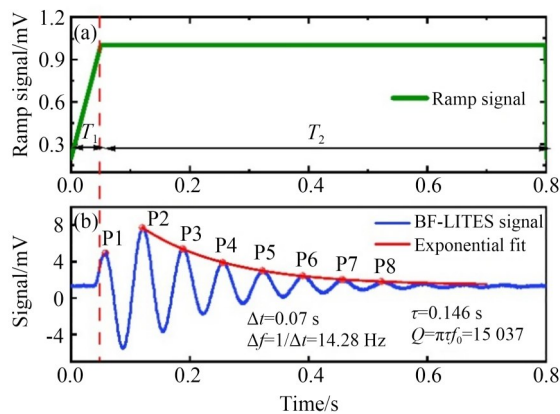


图 2 (a)扫描信号波形图 (b)BF-LITES 信号

Fig. 2 (a) Scan signal waveform diagram (b) BF-LITES signal

石英音叉的谐振频率 f_0 为 32 786.4 Hz, Q 值为 15 037。使用传统电激励方案测得石英音叉的谐振频率和 Q 值分别是 32 786.26 Hz 和 14 854,两者吻合良好,验证了基于 BF-LITES 信号提取石英音叉电学参数的准确性。

在 BF-LITES 传感系统中,产生拍频信号需要将激发光源的调制频率设置为石英音叉的非谐振频率。为了进一步研究调制频率对 BF-LITES 信号的影响,调制频率的优化实验在 32 760~32 810 Hz 的频率范围内进行,测量得到信号幅值如图 3 的蓝色曲线所示。作为对比,通过电激励方式测量的石英音叉频率响应曲线以红色曲线表示于图 3 中(彩图见期刊电子版)。

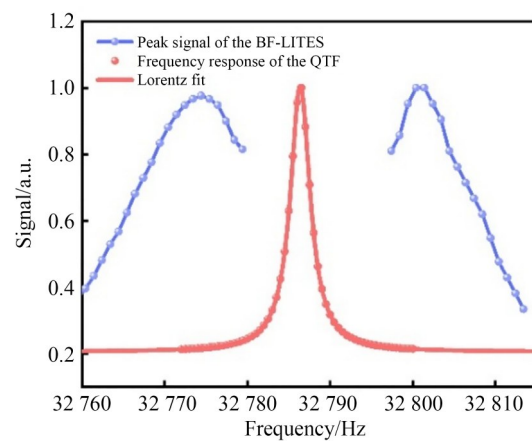


图 3 BF-LITES 信号幅值与激光调制频率的关系曲线
Fig. 3 BF-LITES signal amplitude versus laser modulation frequency curve

决定 BF-LITES 信号幅值的因素主要有两个,其中一个是激光的调制频率,石英音叉的窄带宽响应特性决定了调制频率越接近共振频率,石英音叉越容易被激励振动。另一个影响因素是拍频信号的频率,拍频频率越小意味着信号两峰值之间的间隔越长,就会有更多的能量被耗散。因此两个因素共同决定了 BF-LITES 信号峰值的幅度和产生位置。如图 3 所示,实验测得 BF-LITES 信号幅值与激光调制频率的关系曲线关于石英音叉的共振频率处对称分布,两侧的最佳信号幅值分别出现在 32 774.4 Hz 和 32 800 Hz,分别偏离石英音叉共振频率 +12 Hz 和 -13.6 Hz。基于这一结果,后续优化过程将以

32 800 Hz 为激光调制频率。

基于调制解调方案的痕量气体传感技术中峰值信号幅度往往取决于激光电流的调制深度。因此,实验中优化激光电流调制深度以提高系统的信号幅值。图 4 显示了调制深度在 1~28 mA 的扫描范围内观察到的 BF-LITES 信号幅度的变化,信号幅值随着调制深度呈增大趋势,当调制深度超过 25 mA 后,信号幅度不再进一步增强。因此,后续实验选择 25 mA 的调制深度作为系统的最优调制深度。

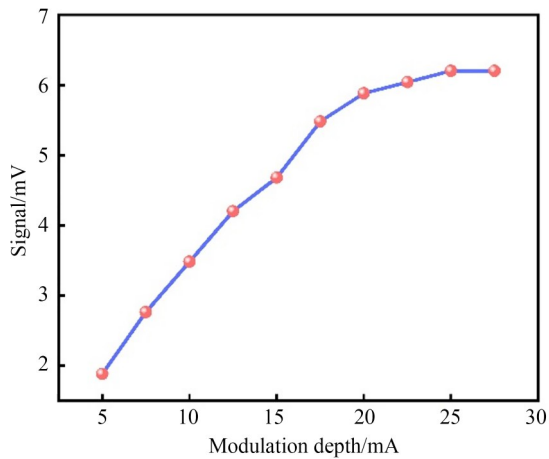


图 4 BF-LITES 信号幅值与激光调制深度的关系曲线
Fig. 4 BF-LITES signal amplitude versus laser modulation depth curve

激励光波长扫描速率可以通过改变梯形波的上升时间 T_1 实现调节。通过调节扫描信号的上升时间,本文研究了 BF-LITES 传感系统输出的信号随激励光波长扫描速率的关系,结果显示随着上升时间的不断增加,系统的信号幅值呈现先增大后减小的趋势,如图 5 所示。当上升时间较短时,石英音叉对光激励的瞬态响应模式占主导,激光与石英音叉相互作用时间较短,无法激发高效的光致热弹效应。随着上升时间的增加,相互作用强度增强,因此会获得更高的信号幅值,当上升时间为 100 ms 时,BF-LITES 信号幅值达到最大值。当继续增加上升时间后,石英音叉对光激励的稳态响应越来越占据主导,此时信号逐渐从拍频信号转变为缓变的谐波信号,峰值幅度减小,且峰值个数减小,对峰值点进行指数拟合后的误差增大。

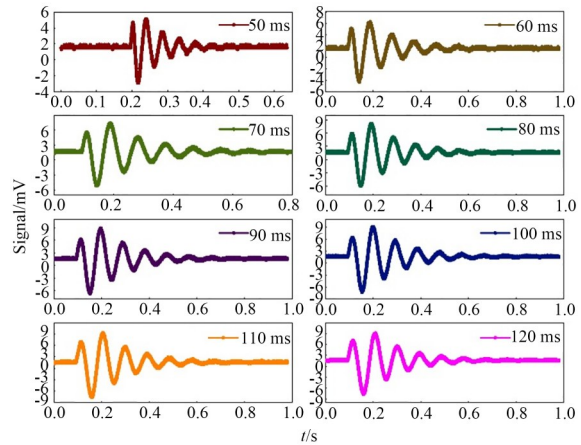


图 5 BF-LITES 信号幅值与扫描信号上升时间的关系曲线

Fig. 5 BF-LITES signal amplitude versus scan signal rise time curve

综上最终确定了系统的最佳驱动参数,选定调制频率是 32 800 Hz,调制深度是 25 mA,梯形波的最佳上升时间是 100 ms。该参数组合能够使得 BF-LITES 信号达到最大值。

将浓度分别为 0 ppm, 2 ppm, 5 ppm, 8 ppm, 10 ppm, 25 ppm, 50 ppm, 75 ppm 和 100 ppm 的甲烷气体通入 Herriot 型多通池内,在每个浓度水平下记录了 200 个数据点,不同浓度的测量平均值如图 6 所示。数据的线性拟合表明,BF-LITES 传感器的灵敏度为 0.078 mV/ppm。拟合得到的 R^2 值为 0.998,表明在所研究的浓度范围内,传感系统对 CH_4 浓度水平具有较好的线性响应。

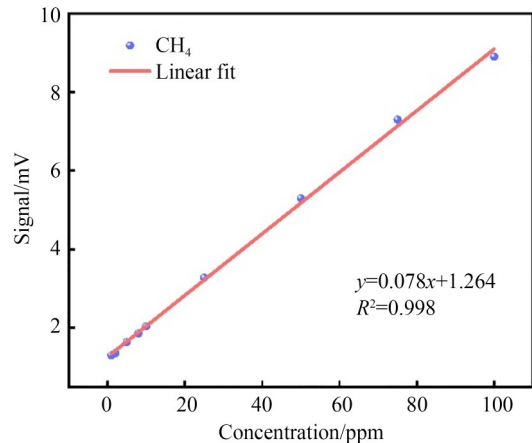


图 6 BF-LITES 传感系统的浓度响应关系
Fig. 6 Concentration response of BF-LITES sensing system

图 7 展示了采用 Allan-Werle 偏差分析法评估 BF-LITES 传感器的长期稳定性。系统通过在 Herriot 型多通池内通入纯 N_2 来记录其噪声信号,得到的 1σ 噪声水平为 $38 \mu V$ 。对于浓度为 2 ppm 的 CH_4 气体,测得的 BF-LITES 信号幅值为 1.56 mV,计算得到的信噪比是 7.79,对应的最低检测极限是 256.74 ppb。Allan-Werle 偏差随平均时间的增加而减小,表明系统的白噪声占据主导。因此,最低检测极限随平均时间的增加而改善,并在最佳平均时间 81 s 时达到最小值 6.71 ppb。

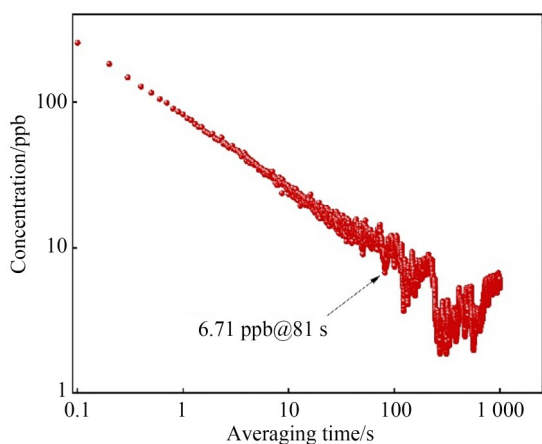


图 7 纯氮气背景下的 Allan-Werle 方差与数据平均时间的关系

Fig. 7 Relationship between Allan-Werle variance and data averaging time under pure nitrogen background

参考文献:

- [1] TURNER A J, FRANKENBERG C, KORT E A. Interpreting contemporary trends in atmospheric methane[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2019, 116(8): 2805-2813.
- [2] LAUVAUX T, GIRON C, MAZZOLINI M, *et al.* Global assessment of oil and gas methane ultra-emitters[J]. *Science*, 2022, 375(6580): 557-561.
- [3] ALDHAFEERI T, TRAN M K, VROLYK R, *et al.* A review of methane gas detection sensors: recent developments and future perspectives[J]. *Inventions*, 2020, 5(3): 28.
- [4] KWAŚNY M, BOMBALSKA A. Optical methods

5 结 论

本文开发了一款基于拍频调制解调方案的 BF-LITES 传感系统,用于 CH_4 气体的高灵敏快速检测。BF-LITES 传感系统使用了一款腔镜分离式的 Herriot 型多通池,有效光程长度为 17 m。系统在 100 ms 内快速扫描 CH_4 的气体吸收谱线,并利用与石英音叉失谐的调制频率进行一次谐波解调,在 800 ms 的测量周期内完成 BF-LITES 信号采集,其峰值信号用于 CH_4 浓度的反演。同时利用信号衰荡特征可以计算得到石英音叉的共振频率和品质因数,从而避免了对传感系统参数的反复校准。采用 Allan-Werle 方差分析评估了该传感系统的稳定性,结果表明,通过将平均时间增加到 81 s,对 CH_4 的最低检测极限可以提高到 6.71 ppb。所开发的 BF-LITES 传感系统具有灵敏度高、响应速度快、无需校准等优势,非常适用于大气环境等领域的 CH_4 实时检测需求。此外,为实现大气 CH_4 浓度的精确反演,未来工作将聚焦于集成温度与压力传感器及相应的矫正算法,从而补偿环境变化对 LITES 信号的影响。

作者贡献声明:

- 尚智金:测量方法的提出,论文构思和撰写;
 刘辰华:测量实验的设计;
 杨子珍:数据结果可视化;
 邱选兵:实验结果校核;
 李传亮:监督与项目管理。

- of methane detection [J]. *Sensors*, 2023, 23(5): 2834.
- [5] LU H F, ISELEY T, BEHBAHANI S, *et al.* Leakage detection techniques for oil and gas pipelines: State-of-the-art [J]. *Tunnelling and Underground Space Technology*, 2020, 98: 103249.
- [6] DEY A. Semiconductor metal oxide gas sensors: a review [J]. *Materials Science and Engineering: B*, 2018, 229: 206-217.
- [7] WU Y, YAO B C, YU C B, *et al.* Optical graphene gas sensors based on microfibers: a review [J]. *Sensors*, 2018, 18(4): 941.
- [8] DOBRZYNIOWSKI D, SZULCZYŃSKI B, DYMERSKI T, *et al.* Development of gas sensor array

- for methane reforming process monitoring [J]. *Sensors*, 2021, 21(15): 4983.
- [9] QIU X B, XIONG X H, *et al.* Development of an FDM-TDLAS sensor for long-term online monitoring of H₂S and CO to predict water wall corrosion trends [J]. *Analytical Chemistry*, 2025, 97(26): 14058-14066.
- [10] LI J Y, HE F, LIU X K, *et al.* Research on measurement accuracy correction for TDLAS-based methane leakage monitoring under environmental variations [J]. *Infrared Physics & Technology*, 2026, 154: 106371.
- [11] HU Q, GAO Y X, *et al.* Multigas TDLAS detection based on variational mode decomposition: frequency division, filtering and interference noise removal [J]. *Analytical Chemistry*, 2025, 97(33): 18177-18187.
- [12] YANG Y Q, PENG Z M, ZHENG D, *et al.* Calibration-free method of recovering the time-varying absorbance profile in TDLAS by the Fourier reconstructed spectroscopy [J]. *Measurement*, 2025, 253: 117771.
- [13] CUI R Y, DONG L, WU H P, *et al.* Three-dimensional printed miniature fiber-coupled multipass cells with dense spot patterns for ppb-level methane detection using a near-IR diode laser [J]. *Analytical Chemistry*, 2020, 92(19): 13034-13041.
- [14] XUE Y, CUI R Y, WANG G, *et al.* Ultra-compact multi-pass cell-based TDLAS sensor for simultaneous dual-position atmospheric methane detection [J]. *Optics Express*, 2025, 33(5): 9400.
- [15] LIANG X Y, SUN X R, SUN H Y, *et al.* Highly sensitive CH₄/C₂H₂ dual-component TDLAS sensor based on a dual-channel hexagram multi-pass cell [J]. *Sensors*, 2026, 26(4): 1267.
- [16] MA Y F, HE Y, TONG Y, *et al.* Quartz-tuning-fork enhanced photothermal spectroscopy for ultrahigh sensitive trace gas detection [J]. *Optics Express*, 2018, 26(24): 32103.
- [17] SHANG Z J, WU H P, WANG G, *et al.* Robust and compact light-induced thermoelastic sensor for atmospheric methane detection based on a vacuum-sealed subminiature tuning fork [J]. *Photoacoustics*, 2025, 42: 100691.
- [18] SUN H Y, QIAO S D, HE Y, *et al.* Parts-per-quadrillion level gas molecule detection: CO-LITES sensing [J]. *Light: Science & Applications*, 2025, 14: 180.
- [19] LIN H Y, ZHENG H D, ZHU W G, *et al.* Multifunctional lithium niobate platform for photodetection and photoacoustic and thermoelastic gas sensing [J]. *Nature Communications*, 2026, 17: 2296.
- [20] QIAO S D, LANG Z T, HE Y, *et al.* Calibration-free measurement of absolute gas concentration and temperature *via* light-induced thermoelastic spectroscopy [J]. *Advanced Photonics*, 2025, 7(6): 066007.
- [21] MA H X, QIAO S D, HE Y, *et al.* Overtone acoustic feedback enhanced light-induced thermoelastic spectroscopy sensing [J]. *Photonics Research*, 2026, 14(3): 683.
- [22] MA H X, INSTITUTE Z R, *et al.* Ultra-sensitive CH₄-LITES sensor enabled by low-frequency slingshot-shaped quartz tuning fork and optical enhancement [J]. *ACS Sensors*, 2025, 10(10): 7997-8006.
- [23] LIU X N, QIAO S D, MA Y F. Highly sensitive methane detection based on light-induced thermoelastic spectroscopy with a 2.33 μm diode laser and adaptive Savitzky-Golay filtering [J]. *Optics Express*, 2022, 30(2): 1304.
- [24] SUN H Y, INSTITUTE Z R, *et al.* Highly sensitive CH₄/C₂H₂ dual-gas light-induced thermoelastic spectroscopy sensor based on a dual-path multiring multipass cell and a circle-head quartz tuning fork [J]. *ACS Sensors*, 2025, 10(6): 4717-4724.
- [25] LI B, WU H P, FENG C F, *et al.* Noninvasive skin respiration (CO₂) measurement based on quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy [J]. *Analytical Chemistry*, 2023, 95(14): 6138-6144.
- [26] 陈祥, 刘浩, 姚路, 等. 光强非线性响应下的光致热弹光谱光强修正 [J]. *光学精密工程*, 2024, 32(3): 317-323.
- CHEN X, LIU H, YAO L, *et al.* Light intensity correction for light-induced thermoelastic spectroscopy based on nonlinear response of light intensity [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2024, 32(3): 317-323. (in Chinese)
- [27] 李香格, 胡迈, 朱同宇, 等. 基于频率调制的煤矿高灵敏甲烷检测技术研究 [J]. *光学精密工程*, 2024, 32(24): 3537-3544.
- LI X G, HU M, ZHU T Y, *et al.* Research on high sensitivity methane detection technology in coal mines based on frequency modulation [J].

- Opt. Precision Eng.*, 2024, 32(24): 3537-3544. (in Chinese)
- [28] WU H P, DONG L, ZHENG H D, *et al.* Beat frequency quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy for fast and calibration-free continuous trace-gas monitoring [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 15331.
- [29] ANGSTENBERGER S, FLOESS M, SCHMID L, *et al.* Coherent control in quartz-enhanced photoacoustics: fingerprinting a trace gas at ppm-level within seconds[J]. *Optica*, 2025, 12(1): 1.
- [30] SUN H Y, HE Y, QIAO S D, *et al.* Highly sensitive and real-simultaneous CH₄/C₂H₂ dual-gas LITES sensor based on Lissajous pattern multi-pass cell[J]. *Opto-Electronic Science*, 2024, 3(11): 240013.
- [31] LIU Y H, QIAO S D, FANG C, *et al.* A highly sensitive LITES sensor based on a multi-pass cell with dense spot pattern and a novel quartz tuning fork with low frequency [J]. *Opto-Electronic Advances*, 2024, 7(3): 230230.
- [32] 李俊, 范斌斌, 曾庆杰, 等. 基于 8.309 μm QCL 的硫化氢/甲烷开路式检测方法研究[J]. *光学精密工程*, 2024, 32(4): 467-477.
- LI J, FAN B B, ZENG Q J, *et al.* Research on open circuit detection method of hydrogen sulfide/methane based on 8.309 μm QCL[J]. *Opt. Precision Eng.*, 2024, 32(4): 467-477. (in Chinese)

通讯作者:



尚智金(1996—),男,博士,讲师,2024年于山西大学获得博士学位,现为太原科技大学应用科学学院讲师,主要从事激光光谱技术在痕量气体检测中的应用研究。E-mail: zjshang@tyust.edu.cn

通讯作者:



李传亮(1983—),男,教授,博士生导师,2006年于聊城大学获得学士学位,2011年毕业于华东师范大学获得博士学位,主要从事分子激光光谱学、高灵敏光电传感器等的研究。E-mail: cli@tyust.edu.cn