

# 基于 TDLAS 甲烷检测系统的长光程池研究与设计

秦雨婷<sup>1</sup>, 陈红岩<sup>2</sup>

(1. 中国计量大学机电工程学院, 浙江 杭州 310018; 2. 中国计量大学现代科技学院, 浙江 义乌 322000)

**摘要:**采用 Herriott 型长光程池结构原理,通过理论研究和仿真分析得到一定条件下 Herriott 池反射次数最优解,利用镀膜凹面镜作为反射镜,在池体上集成光学元件,进行了长光程、低成本、小体积光程池的设计。经过实验验证,所设计的物理长 23 cm,体积 243 mL 的光程池,能达到 11 m 有效光程长,并搭建在 TDLAS 甲烷检测系统中,结果表明检测下限最低浓度为 47.6 ppb。这为低浓度、高精度、微型化的 TDLAS 甲烷检测系统的推广应用提供了一种有效的途径。

**关键词:**赫里奥特气室;光学仿真;可调谐激光吸收光谱;甲烷检测

**中图分类号:** O439; TN249 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3969/j.issn.1001-5078.2024.04.006

## Research and design of long optical range cell based on TDLAS methane detection system

QIN Yu-ting<sup>1</sup>, CHEN Hong-yan<sup>2</sup>

(1. School of Electrical and Mechanical Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China;  
2. China Jiliang University College of Modern Science and Technology, Yiwu 322000, China)

**Abstract:** In this paper, the structural principle of Herriott-type long optical range cell is adopted, and the optimal solution for the number of reflections of the Herriott cell under certain conditions is obtained through theoretical research and simulation analysis, and the design of a long optical range, low-cost and small-volume optical range cell is carried out by utilizing coated concave mirrors as mirrors, and by integrating the optical elements in the cell body. After experimental verification, the designed light-range cell with a physical length of 23 cm and volume of 243 mL of optical range cell can achieve 11 m effective optical range length, and built in the TDLAS methane detection system. The results show that the lower limit of detection is the lowest concentration of 47.6 ppb, which provides an effective way to promote the application of the low-concentration, high-precision, and miniaturized TDLAS methane detection system.

**Keywords:** Herriott cell; optical simulation; tunable laser absorption spectroscopy; methane detection

### 1 引言

天然气的主要成分是甲烷,甲烷是一种易燃易爆气体。近年来因天然气泄漏导致的爆炸事件层出不穷,数据显示 2021 年国内天然气事故共 455 起,死亡 59 人、受伤 316 人;2022 年共 270 起,死亡 18 人、受伤 89 人<sup>[1]</sup>。及时发现并消除微量甲烷泄露对人民生命和社会财产安全具有重要意义。

TDLAS 技术因非接触测量、选择性强、灵敏度高、响应速度快等优点被广泛应用于气体检测领域,

但在低压、低浓度条件下,仍存在吸收信号弱、信噪比高、检测精度低的缺陷。

长光程池是 TDLAS 系统的核心部件,要提高 TDLAS 系统灵敏度,就要增加光程<sup>[3]</sup>。Herriott 池因结构简单、反射次数多被广泛应用在 TDLAS 中。

目前 Herriott 池正向小体积长光程方向发展。2016 年,李春光等人<sup>[4]</sup>使用新颖的密集光斑模型设计了一款长光程池;吴飞龙等人<sup>[5]</sup>提出了一种螺旋型的紧凑多光程池;2020 年,Zhou 等人<sup>[6]</sup>研制了一

基金项目:浙江省基础公益研究计划项目(No. JGF21E040005)资助。

作者简介:秦雨婷(1999-),女,硕士研究生,主要研究方向为激光甲烷检测。E-mail:1369860252@qq.com

通讯作者:陈红岩(1965-),男,博士,教授,主要研究方向为红外光学气体传感器。E-mail:bbchy@163.com

收稿日期:2023-06-24;修订日期:2023-12-01

款微型多通道池,均在小体积内显著提高了光程;上述成果中,Herriott 池体积紧凑且光程长,但池体独立于其他光学元件,导致系统搭建复杂且集成化程度低。商用 Herriott 池弥补了这一缺陷,比如上海筱晓有限公司、量青光电有限公司分别生产的 3 m 光程、5 m 光程不锈钢材质的 Herriott 池,将光学元件集成在 Herriott 池内部,实现了集成化、便捷性设计,但成本高昂且光程较短。

通过理论研究和仿真分析得到一定条件下 Herriott 池反射次数最优解,利用镀膜凹面镜作为反射镜,实现长光程低成本设计;对立体结构进行设计,在池体上集成光学元件,实现小体积、一体化设计。为低浓度、高精度 TDLAS 甲烷检测系统的发展和广泛应用奠定基础。

## 2 Herriott 池理论研究

Herriott 池的光学系统由两个球面镜组成的共轴系统<sup>[7]</sup>,如图 1 所示。光线在两凹面镜之间通过反射增加光程,反射光斑分布如图 2 所示,连续两次反射光斑分布在不同镜面上,相邻两次反射在  $xy$  面上投影之间的夹角为  $\theta$ <sup>[8]</sup>。Herriott 池的设计基于傍轴近似理论<sup>[9]</sup>,此条件下总光程  $L \approx nd$ ,  $n$  是反射次数,  $d$  是镜间距,当  $d$  一定时,  $n$  越多  $L$  越长,因此需对反射次数的影响因素进行研究。

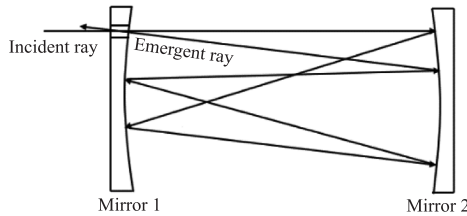


图 1 Herriott 池结构  
Fig. 1 Herriott cell structure

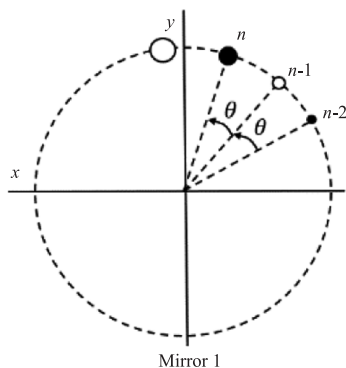


图 2 反射光斑分布  
Fig. 2 Reflected spot distribution

### 2.1 反射次数影响因素

#### 2.1.1 入射角度

基于 Pierce 电子光学循环聚焦原理可得,光线

第  $n$  次反射后的投影点坐标在平面直角坐标系中用  $(x_n, y_n)$  表达<sup>[10]</sup>:

$$\begin{cases} x_n = A\sin(n\theta + \delta) \\ y_n = B\sin(n\theta + \beta) \end{cases} \quad (1)$$

以  $x$  轴为例  $A$  是离反射镜片中心的距离;  $\delta$  是入射光线初相位;  $B$  和  $\beta$  是相对  $y$  轴。可知,改变初相位会改变反射光斑位置,进而影响反射次数。

设定入射光方向向量为  $(x'_0, y'_0, z'_0)$ ,  $z'_0$  归一化为 1,  $x'_0, y'_0$  与  $\delta, \beta$  关系如下:

$$\begin{cases} \tan\delta = \left(\sqrt{\frac{4f}{d} - 1}\right) / \left(1 + 2f\frac{x'_0}{x_0}\right) \\ \tan\beta = \left(\sqrt{\frac{4f}{d} - 1}\right) / \left(1 + 2f\frac{y'_0}{y_0}\right) \end{cases} \quad (2)$$

固定镜焦距  $f$ 、镜间距  $d$  以及入射孔位置,通过 TracePro 仿真,得到反射次数与入射方向向量关系如图 3 所示。

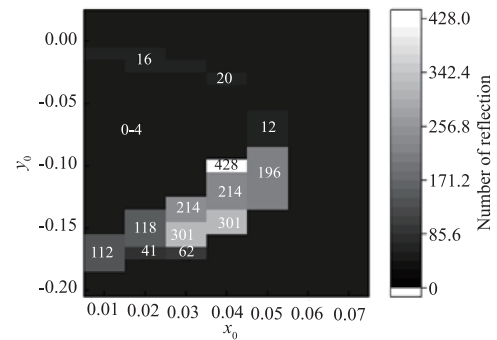


图 3 反射次数与入射方向向量关系  
Fig. 3 Relation between the number of reflections and the incidence angle

可知入射方向向量在一定范围内变化时,对反射次数影响较小;取值不同范围的方向向量进行仿真,对应反射次数光斑分布如图 4 所示。

为充分利用凹面镜资源、避免光斑边缘化和光干涉对结果的影响,应保证反射光斑分布如图 4(b) 所示,呈单周期圆形分布,因此当  $df$  一定时,入射角度应固定在特定范围内。



(a) 反射 16 次

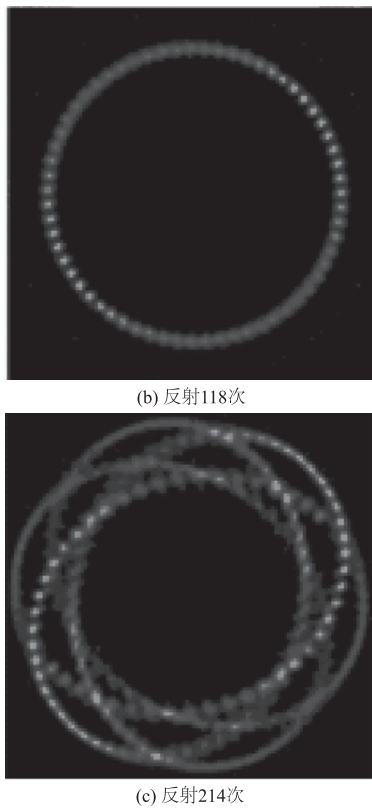


图 4 不同反射次数下的光斑分布

Fig. 4 Spot distribution with different number of reflections

2. 1. 2  $d/f$

当反射光斑呈圆形分布时, 根据再进入条件<sup>[11-12]</sup>得  $n\theta = 2\mu\pi$ , 其中  $n$  步长为 2,  $\mu$  是反射光斑分布的圆周数, 步长为 1。给定  $f, n$ , 当  $d$  不同时,  $\theta$  不同, 导致  $\mu$  不同, 因此引入变量  $p, k$  来表示不同的解:

$$n = 2p\mu + k \tag{3}$$

可得:

$$n = \frac{k\pi}{\pi - p \cos^{-1}(1 - (d/2f))} \tag{4}$$

可知反射次数  $n$  与  $f$  和  $d$  有关, 令  $f$  不变, 理论计算得到反射次数与  $d$  关系如图 5 所示。

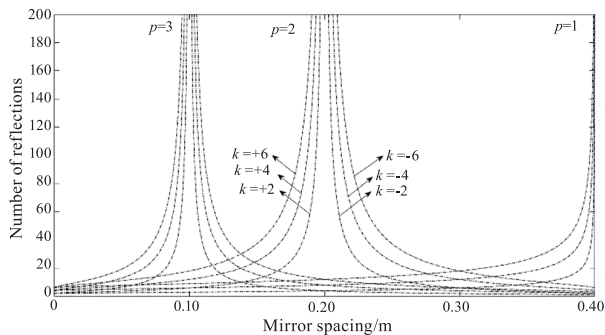


图 5  $f$ 一定时, 反射次数与  $d$  的关系

Fig. 5 The number of reflections for a certain  $f$  as a function of  $d$

可知随着  $p$  绝对值的增加, 镜间距  $d$  会减小; 随着  $k$  的增加, 反射次数会增加。而当  $k, p, f$  一定时, 值的改变对反射次数影响较大。

2. 1. 3 光线孔径

当光线孔径小于入射/出射光束直径时, 光线无法全部射入射出, 导致光线发生折射, 损耗光能; 反之, 会导致光线提前出射, 使得光线反射次数衰减。实际中入射\出射光线是具有发散角和较小横截面的光束, 而非一个点, 仿真可知光束直径随反射次数呈现周期性变化, 如图 6 所示, 因此开设孔时要考虑光线在该位置的横截面积和发散角。

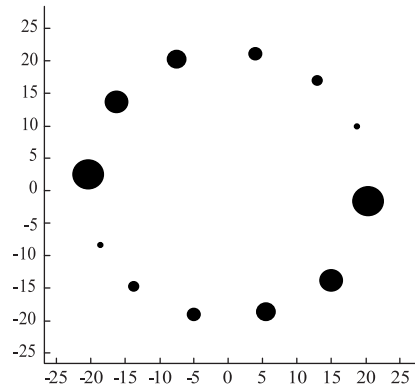


图 6 理论光斑大小分布

Fig. 6 Theoretical spot size distribution

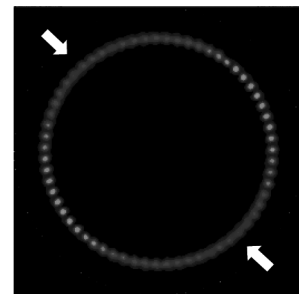


图 7 光干涉现象

Fig. 7 Light interference phenomenon

2. 2 光干涉现象

凹面镜所能承受的反射光斑个数是有限的, 反射次数过多时, 会发生光干涉现象, 如图 7 所示, 光学干涉条纹是限制 TDLAS 系统灵敏度提高的主要因素之一<sup>[13]</sup>, 导致干涉噪声增加, 影响测量结果, 因此要避免光干涉现象发生。

3 Herriott 池的仿真与设计

3. 1 Herriott 池仿真

研究可知光在吸收池中通过的往返次数主要受  $d$  与  $f$  比值的影响, 理论计算所得反射次数与  $d/f$  关系如上述所述, 在一定范围内对应的反射次数不断增加, 而在实际中反射次数不可能无限增加, 因此需对非理想条件下的实际反射次数进行

仿真验证。

基于 TDLAS 甲烷检测系统对小型化、便捷性的需求,Herriott 池的腔体不宜过大,考虑后续加工难度及成本,选定  $d$  为 200 mm 左右,凹面镜直径为 50.8 mm。取  $d = 194 \sim 203$  mm,每间隔 1 mm 进行一次仿真。

在 TracePro 中建立模型,同轴对称生成两片完全相同的凹面镜,尺寸为 50.8 mm,其中镜片 1 固定在坐标轴原点,镜片 2 沿共轴平移,两镜片凹面侧中心的距离为  $d$ ;设置两镜面表面属性为 Perfect mirror。在镜面 1 适当位置开设楔形入射孔,保证光线

入射、出射顺利。在入射孔中心处设置格点光源,类型为高斯光源,根据实际设计光源直径、发散角以及入射方向向量,模型设计如图 8 所示。通过光线追踪仿真验证,结果如表 1 所示。

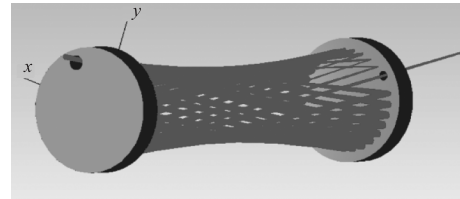


图 8 TracePro 气室模型

Fig.8 TracePro air chamber mode

表 1  $d = 194 \sim 203$  mm 区间模拟结果  
Tab.1  $d = 194 \sim 203$  mm simulation results

$d/mm$	$n$	$L/m$	Whether light interferes	$d/mm$	$n$	$L/m$	Whether light interferes
194	48	9.31	No	199	4	0.796	No
195	58	11.3	No	200	4	0.80	No
196	80	15.68	Yes	201	4	0.804	No
197	4	0.788	No	202	156	31.2	Yes
198	4	0.792	No	203	104	21.1	Yes

实际中  $d$  在 197 mm ~ 201 m 之间出现了反射次数凹陷的情况。在剔除凹陷情况的剩余稳定结果中选取无光干涉现象且反射次数最多的参数作为最优参数。上述 TracePro 仿真中入射和出射孔为同一孔,此结构导致光路调节复杂。因此实际让光线减少一次反射,在不同于入射孔所在的镜面开设出射孔,使入射和出射孔在 Herriott 池的不同侧。最终选择镜间距  $d = 195$  mm,反射 57 次,光程长 11 m。

### 3.2 Herriott 池设计

利用 Solidworks 进行立体结构设计,如图 9 所示,包括入射、出射窗口组件、镜片安装组件以及腔体。入射、出射窗口组件用于固定准直器和探测器,镜片安装组件用于固定凹面镜,腔体是空心圆柱管用于待测气体存储。腔体以粘接方式与镜片安装组件连接,保证系统的共轴性;入射、出射窗口组件,镜片安装组件之间均有密封圈和垫片,减小损耗并保证系统的密封性,提高使用寿命;三者以法兰形式和螺纹孔连接,方便 Herriott 池的拆卸和清洁,降低更换成本;实现集成化设计,提高系统灵活性;窗口两端底部有 M6 螺纹孔,可与光学固定架连接;腔体上方开设有出气孔和入射孔,通过气体快速插头与气体软管连接。

入射窗口及镜片安装组件如图 10 所示,出射窗口结构类似。入射窗口包括准直器固定组件和转接件,用于固定准直器,前者有一定的倾斜角。镜片安

装组件包括内、外壳,外壳开设有楔形窗口与入射孔对应;内壳两侧有不同尺寸的凹槽,用于放置凹面镜和连接腔体,凹面镜与腔体之间挤压有橡胶圈,避免凹面镜磨损。

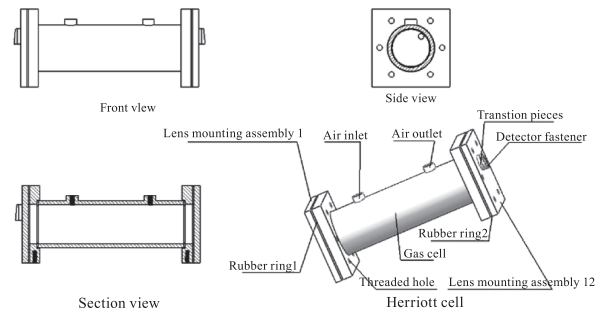


图 9 Herriott 池立体结构

Fig.9 Three-dimensional structure of Herriott cell

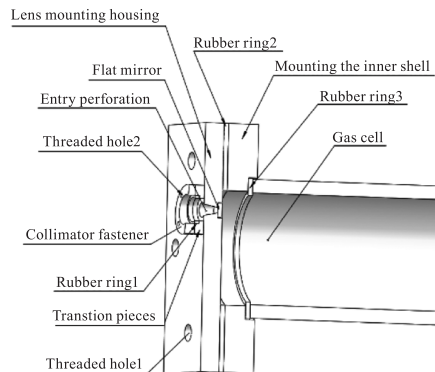


图 10 入射窗口及镜片安装模块

Fig.10 Entrance window and lens mounting module

### 3.3 Herriott池实现

#### 3.3.1 凹面镜

为降低造价成本,选择镀膜凹面镜作为反射镜。常用金属膜包括金膜、银膜、铝膜,不同膜对光束的反射率不同,表2对比了激光在不同膜中经过不同反射次数反射后,出射与入射光强比值。

可知金膜的光损耗要远小于银膜,为避免光损耗严重,选择金膜作为反射膜。

表2 不同反射次数下,出射光强与入射光强比值

Tab. 2 Under different reflection times, the ratio of outgoing light intensity to incident light intensity

Number of reflection	10	20	30	40	50	60	70
Gold film I/I <sub>0</sub> /%	75.98	62.08	50.73	41.45	33.86	27.67	22.61
Silver coating film I/I <sub>0</sub> /%	61.27	40.73	27.08	18.00	11.97	7.96	5.29

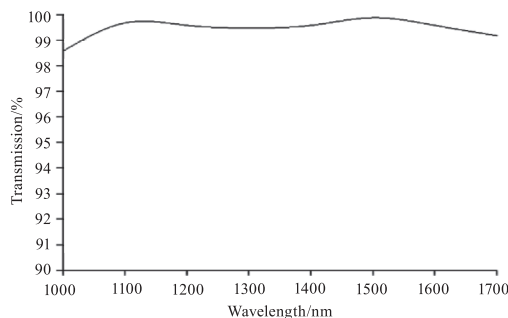


图11 1100 ~ 1650 nm 增透膜光通过率

Fig. 11 Light passing rate of 1100 ~ 1650 nm anti-reflection film

#### 3.3.3 光电探测器

光电探测器可将光信号转变为电信号<sup>[14]</sup>,光电二极管在探测微弱光信号时响应速度快且灵敏度高,因此选择北京敏光公司的 LSIPD - L3 型号光电二极管探测器。该探测器感光面积 3 mm × 3 mm,响应时间 140 ns,光谱响应曲线如图 12 所示,在 1653.7 nm 处的响应度为 0.9,能较好满足实验要求。

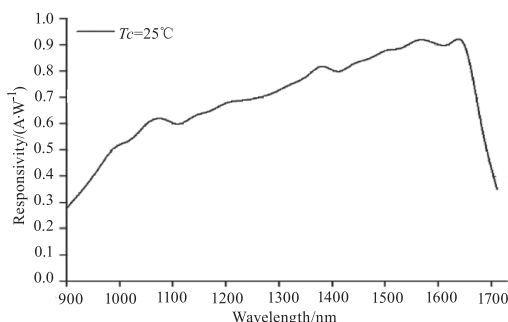


图12 光电探测器响应曲线

Fig. 12 Photodetector response curve

#### 3.3.4 实物展示

选择透明亚克力板材料进行 Herriott 池加工,便于反射光斑数的验证。Herriott 池实物如图 13 所

#### 3.3.2 准直器

准直器可将光纤输出的发散光转变成平行光,减小光损耗。选用南京晶萃光学的 FAC2-1550-APC 型号准直器,发散全角为  $0.06 + 0.01^\circ/0.0^\circ$ ,输出光斑直径为 2 mm,透镜增透膜范围为 1100 ~ 1650 nm,对不同波长光的通过率如图 11 所示,甲烷吸收峰 1653.7 nm 处的光束通过率为 99%,在实验要求范围内。

示,两凹面镜中心距离 195 mm,系统长 23 cm,腔体体积 243 mL。将红外光作为光源,反射光斑分布如图 14 所示,单面镜有 28 个反射点,与理论仿真一致。

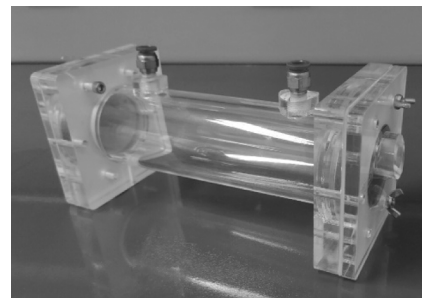


图13 Herriot池搭建

Fig. 13 Herriot pool is built



图14 实际光斑分布

Fig. 14 Actual spot distribution

## 4 TDLAS 甲烷检测系统

搭建 TDLAS 甲烷检测系统如图 15 所示。

### 4.1 线性度验证

通过配气仪得到浓度为 0 ppm、100 ppm、200 ppm、300 ppm、400 ppm、500 ppm 的甲烷气体,分别通入到 Herriott 池中。DFB 激光器输出波长 1653.7 nm 的激光到 Herriott 池中与甲烷气体接触,出射光由探测器

接收并传送到 FPGA 内部,提取出与气体浓度有关的二次谐波信号幅值。为保证数据准确性,在不同浓度甲烷气体的二次谐波幅值稳定后连续采集 60 s,实验结果如图 16 所示。

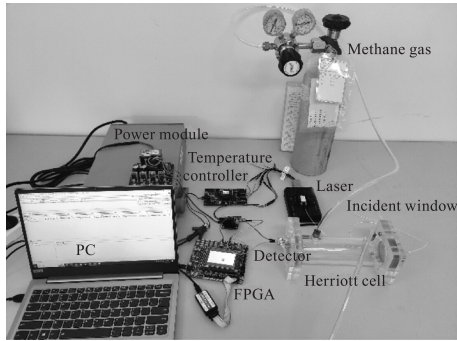


图 15 TDLAS 甲烷检测系统

Fig. 15 TDLAS methane detection system

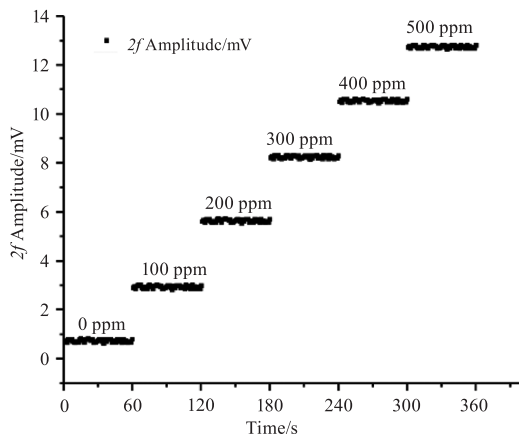


图 16 二次谐波幅值信号随时间标定曲线

Fig. 16 Second harmonic amplitude signal calibration curve over time

求取每个浓度所对应二次谐波幅值的平均值,将所得值与气体分析仪读出的实际浓度值  $C$  之间进行线性拟合如图 17 所示,得到二次谐波幅值与气体浓度有以下关系,两者线性拟合度  $R^2$  为 99.88%,表明系统线性度良好。

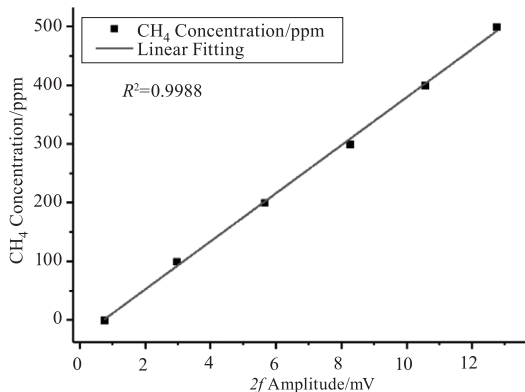


图 17 甲烷浓度与二次谐波幅值信号拟合曲线

Fig. 17 Methane concentration and second harmonic amplitude signal fit curve

$$C = 40.93436x - 29.17823 \quad (5)$$

其中,  $x$  是二次谐波幅值,单位 mV;  $C$  是甲烷气体浓度,单位 ppm。

#### 4.2 稳定性验证

向 Herriott 池中通入 0 ppm 的甲烷气体,连续采集二次谐波幅值并通过式(5)反演待测气体浓度。对检测系统连续进行 600 s 的监测,可得到 6000 个数据,其结果在 -1.5 ~ 4.9 ppm 之间波动,系统稳定性良好。

为进一步分析系统的稳定性,需对采集数据进行艾伦方差计算,过程由式(6)描述<sup>[15]</sup>:

$$\begin{cases} k = \frac{N}{m} \\ \bar{y}_i = \sum_{j=i}^{i+m-1} \frac{y_j}{m} \\ \sigma(y) = \sqrt{\frac{1}{2(k-1)} \sum_{i=1}^k (\bar{y}_{i+1} - \bar{y}_i)^2} \end{cases} \quad (6)$$

其中,  $N$  是数据总数;  $m$  是每组数据个数;  $k$  是分组个数;  $\bar{y}_i$  是每组数据的平均值;  $\sigma(y)$  是艾伦方差。根据计算得到艾伦方差与积分时间的曲线如图 18 所示。

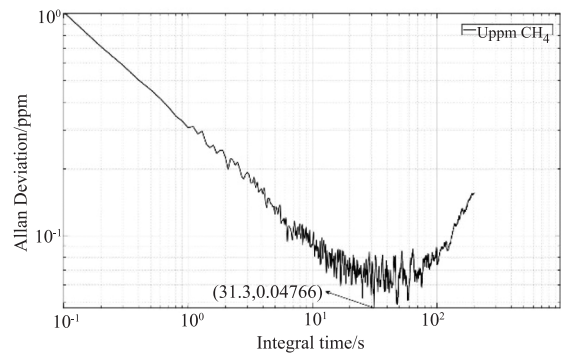


图 18 Allan 方差曲线

Fig. 18 Allan variance curve

可知艾伦偏差随着积分时间增大先下降在上升,积分时间为 0.1 s 时,艾伦偏差为 0.908 ppm,即检测系统的  $1\sigma$  检测下限为 908 ppb;积分时间为 31.3 s 时,系统检测下限最低为 47.6 ppb,结果表明该系统适用于微量甲烷泄露监测。

#### 5 结论

通过研究 Herriott 池原理,在小体积 Herriott 池的基础上实现了较长光程,集成准直器和光电探测器实现长光程池一体化设计,方便拆卸和清洁、降低了更换成本、提高系统灵活性;利用镀膜凹面镜作为反射镜降低了造价成本,弥补了 Herriott 池存在的缺陷。基于此长光程池搭建 TDLAS 甲烷检测系统,结果表明其检测下限最低为 47.6 ppb,适用于微量甲

烷泄露监测,为基于 TDLAS 的低浓度、高精度甲烷检测系统的发展和广泛应用奠定基础。

#### 参考文献:

- [1] 全国燃气事故分析报告(2021年·第三季度报告),事故数据及分析[R/OL]. //https://mp.weixin.qq.com/s?\_\_biz=MzAxNzk4MTA5NQ==&mid=2247532662&idx=1&sn=8edf48b5b234ad14e6634c755019064c&hksm=9bd4bbeaca8c2a8a6f975707f9d78b131a584bf09cbd580103563b2f05ea871a7163671906e,2021:7-16.
- [2] Chen Kun, Li Yonghua. Multi-optical range high-precision trace gas detection system based on TDLAS principle[J]. Applied Laser, 2018, 38(6):993-999. (in Chinese)  
陈坤,李永华.基于TDLAS原理的多光程高精度微量气体检测系统[J].应用激光,2018,38(6):993-999.
- [3] Li Meng, Guo Jinjia, Ye Wangquan, et al. Study on TDLAS system with a miniature multi-pass cavity for CO<sub>2</sub> measurements[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2018, 38(3):697-701, 707. (in Chinese)  
李萌,郭金家,叶旺全,等.基于微型多次反射腔的TDLAS二氧化碳测量系统[J].光谱学与光谱分析,2018,38(3):697-701,707.
- [4] Li C, Dong L, Zheng C, et al. Compact TDLAS based optical sensor for ppb-level ethane detection by use of a 3.34 μm room-temperature CW interband cascade laser[J]. Sensors and Actuators B: Chemical, 2016, 232:188-194.
- [5] Wu Feilong, Li Chuanliang, Shi Weixin, et al. Study on the spiral-torus herriott type cell[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2016, 36(4):1051-1055. (in Chinese)  
吴飞龙,李传亮,史维新,等.一种螺旋型的紧凑多光程池[J].光谱学与光谱分析,2016,36(4):1051-1055.
- [6] Zou M, Yang Z, Sun L, et al. Acetylene sensing system based on wavelength modulation spectroscopy using a triple-row circular multi-pass cell[J]. Optics Express, 2020, 28(8):11573-11582.
- [7] Herriott D, Kogelnik H, Kompfner R. Off-axis paths in spherical mirror interferometers[J]. Applied Optics, 1964, 3(4):523-526.
- [8] Fang Bo, Zhao Weixiong, Yang Nana, et al. Development and application of optical multi-pass cells[J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2021, 38(5):617-632. (in Chinese)  
方波,赵卫雄,杨娜娜,等.光学多通池的研制及应用[J].量子电子学报,2021,38(5):617-632.
- [9] Hu Yongyong, Cui Ruyue, Wu Hongpeng, et al. Design and progress of miniature multi-pass cells[J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2021, 38(5):608-616. (in Chinese)  
胡勇勇,崔茹悦,武红鹏,等.微型多通池的设计及研究进展[J].量子电子学报,2021,38(5):608-616.
- [10] Yang Mu, Li Cuanliang, Wei Jilin. A novel design of multi-pass herriott type cell[J]. Acta Sinica Quantum Optica, 2013, 19(2):189-194. (in Chinese)  
杨牧,李传亮,魏计林.基于Herriott型长程池的光学设计的研究[J].量子光学学报,2013,19(2):189-194.
- [11] Tarsitano G, Webster C R. Multilaser herriott cell for planetary tunable laser spectrometers[J]. Applied Optics, 2007, 46(28):6923-6935.
- [12] Altmann Baumgart R, Weitkamp C. Two-mirror multipass absorption cell[J]. Applied Optics, 1981, 20(6):995-999.
- [13] Zhang Zengfu, Li Chenxi, Chen Wenliang, et al. Study on the new herriott cell for escaping ammonia detection in sampling measurement[J]. Laser & Infrared, 2014, 44(5):545-548. (in Chinese)  
张增福,李晨曦,陈文亮,等.适合逃逸氨取样测量的新型样品池研究[J].激光与红外,2014,44(5):545-548.
- [14] Huo Xiaobei, Yang Dezhen, Yu Songlin, et al. Research on status and development of single photon detector[J]. Laser & Infrared, 2023, 53(1):3-11. (in Chinese)  
霍晓培,杨德振,喻松林,等.单光子探测器研究现状与发展[J].激光与红外,2023,53(1):3-11.
- [15] Yang Songtao, He Liqing. Performance and filtering algorithm evaluation of MEMS gyro in photoelectric platform based on allan variance[J]. Laser & Infrared, 2023, 53(3):413-418. (in Chinese)  
杨松涛,和丽清.光电平台MEMS陀螺性能及滤波算法的Allan方差评价[J].激光与红外,2023,53(3):413-418.