

文章编号 1004-924X(2018)08-1855-07

基于 TDLAS 和 ICL 的紧凑中红外痕量气体探测系统

李春光^{1,3,4}, 董磊², 王一丁³, 林君^{1*}

- (1. 吉林大学 仪器科学与电气工程学院, 吉林 长春 130061;
2. 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;
3. 吉林大学 电子科学与工程学院 集成光电子学国家重点联合实验室, 吉林 长春 130012;
4. 吉林大学 生物与农业工程学院, 吉林 长春 130022)

摘要: 为了实现基于可调谐激光吸收光谱技术的高检测灵敏度、低功耗、小型中红外痕量气体传感器设计, 结合碲化镓 (GaSb) ICL 和紧凑型多反射气体吸收气室 (MPC) 研制了基于不同结构传感光学核的两个小型 TDLAS 传感系统。两个传感光学核的总功率消耗为 3.7 W, 并通过探测甲烷 (CH_4) 和甲醛 (CH_2O) 分别验证了双层结构和单层结构系统的性能。实验结果表明: CH_4 和 CH_2O 系统的检测灵敏度分别为 5.0 nL/L 和 3.0 nL/L, 测量精度分别为 1.4 nL/L 和 1.0 nL/L。此外, 相同配置情况下将两种结构系统应用于甲、乙烷 (C_2H_6) 同步检测, 通过对校园环境中甲、乙烷进行连续 66 h 的监测试验, 验证了设计的紧凑型中红外痕量气体检测系统能够稳定有效地工作, 基本满足目前民用气体测量的稳定可靠、精度高、抗干扰能力强等要求。

关键词: 激光传感器; 半导体激光器; 量子级联; 光谱; 红外

中图分类号: O657.38 **文献标识码:** A **doi:** 10.3788/OPE.20182608.1855

Compact mid-infrared trace gas detection system based on TDLAS and ICL

LI Chun-guang^{1,3,4}, DONG Lei², WANG Yi-ding³, LIN Jun^{1*}

- (1. College of Instrumentation & Electrical Engineering, Jilin University, Changchun 130061, China;
 2. State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan 030006, China;
 3. State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China;
 4. College of Biological and Agricultural Engineering, Jilin University, Changchun 130022, China)
- * Corresponding author, E-mail: lin_jun@jlu.edu.cn

Abstract: Two compact Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy (TDLAS) sensor systems were developed based on different structural optical cores. The two optical cores combine two recent developments; gallium antimonide (GaSb)-based ICL and a compact multipass gas cell (MPC), with the aim of developing a compact TDLAS-based sensor for mid-IR gas detection with high detection sensi-

收稿日期: 2018-04-23; **修订日期:** 2018-05-29.

基金项目: 博士后创新人才支持计划项目 (No. BX201700100); 中国博士后科学基金资助项目 (No. 2017M621206); 国家自然科学基金资助项目 (No. 61622503, 61575113, 61307124, No. 61805099)

tivity and low power consumption. The two-floor structure sensor was used for methane (CH_4) measurements and the single-floor structure sensor was used for formaldehyde (CH_2O) concentration measurements, with the two optical sensor cores consuming 3.7 W of power. Detection limits of ~ 5 nL/L and ~ 3 nL/L with measurement precisions of ~ 1.4 nL/L and ~ 1 nL/L were achieved for CH_4 and CH_2O concentration measurements, respectively. In addition, the two-structure system was used for CH_4 and C_2H_6 detection under the same conditions over a period of 66 h campus. The results show that the sensors worked steadily and effectively. They can satisfy the system requirements of non-contact, online, real-time, high-precision, and rapid signal acquisition, as well as strong anti-jamming and high stability.

Key words: laser sensors; semiconductor lasers; quantum cascade; spectroscopy; infrared

1 引言

痕量气体传感的多样化应用包括环境监测、工业区气体浓度检测和用于医疗诊断的呼气探测等。这些应用中,对低浓度多样痕量气体进行快速、准确和精细测量是至关重要的。可调谐二极管激光吸收光谱(Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS)是一种用于实时分析气体组成的通用工具,由于它的光谱分辨率比多普勒线宽更窄,因此可对复杂的痕量气体混合成份进行有效识别和明确测量^[1-4]。到目前为止,使用 TDLAS 技术可以有选择性地对痕量气体组份进行 nL/L 量级的实时探测^[5]。然而,基于 TDLAS 的传感器的性能依赖于进行具体气体传感应用的相关激光光源。波长上至 $3\text{ }\mu\text{m}$ 的近红外单模、分布反馈激光二极管已广泛应用于工业^[6-7]。中红外单模、室温量子级联激光器(QCLs)波长下至 $3.7\text{ }\mu\text{m}$ ^[8],这使得 $3\sim 3.7\text{ }\mu\text{m}$ 波长成为中红外区的缺口。甲醛(CH_2O)和甲烷(CH_4)、丙烷(C_3H_8)、乙烷(C_2H_6)和丙烯(C_3H_6)等大多数碳氢化合物多种气体组分在这个缺口处均有很强的吸收特性,因为它们的基频吸收带就位于这里。随着基于单模、砷化镓(GaSb)材料的 $3\sim 4\text{ }\mu\text{m}$ 间带级联激光器(Interband Cascade Laser, ICL)的商业化,给基于 TDLAS 的传感应用,尤其是碳氢化合物的探测开创了新的机会^[9-14]。ICLs 和 QCLs 一样有很小的尺寸,并可在低功耗水平工作于室温连续模式^[15]。

基于 TDLAS 传感器的尺寸主要取决于多反射气体吸收气室(Multipass gas absorption Cell, MPC)占用的空间和相关联的气体处理系统。美

国 Sentinel Photonics/Aeris Technologies 公司于 2013 年研制了体积更小的新型 MPC^[16-17]。相较于传统 MPC 使用的圆形和椭球形光斑,此 MPC 使用两个凹球面镜和更复杂密集的光斑,使得光斑重叠明显减少。

使用 CH_4 、 CH_2O 和 C_2H_6 气体检测验证光学传感器性能。 CH_4 是温室效应的主要贡献者,并且是天然气生产、存贮和运输、煤矿勘探和液化甲烷等众多工业过程的主要安全隐患。 C_2H_6 是天然气中除甲烷外的第二大组分,且影响大气化学和气候。因此,在乡镇和城市监测甲烷和乙烷的能力是非常重要的^[18-19]。 CH_2O 是在工业和消费产品中常用的化学物质,因为它具有较高的化学反应和较好的热稳定性。目前,每年商业产生的 2100 万吨的一半被用作人造板胶黏剂。鉴于甲醛的致癌作用,实时监测其室内浓度水平具有重要意义^[20-21]。

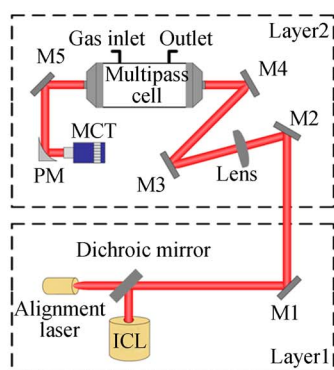
2 传感器设计

2.1 双层结构光学核设计

使用连续波、分布反馈 ICL 作为系统光源(Nanoplus GmbH, Germany),此 ICL 采取 TO-66 封装形式,单模出射中红外光的中心波长为 $3\,291\text{ nm}$ ($3\,038.5\text{ cm}^{-1}$),内部封入 $5\text{ cm}\times 5\text{ cm}\times 5\text{ cm}$,带有热电制冷(Thermo-electric Cooler, TEC)的立方体散热器。为了减小甲烷传感器的尺寸设计了三维折叠式光学路径,该系统共包括两层,原理框图如图 1(a)所示。ICL、可见准直光源和二向色镜处于底层(Layer 1)。二者通过二向色镜(ISO optics, model BSP-DI-25-3)进行耦合。与水平面成 45° 的平面镜(M1)将合束光从底层折射到顶层(Layer 2),平面镜(M2)将

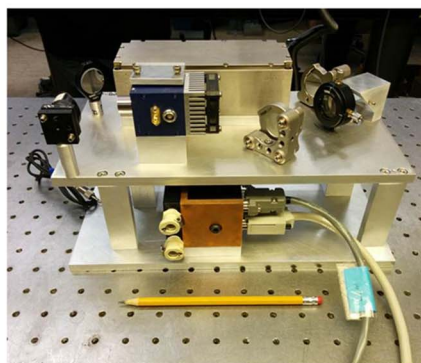
光束从垂直方向转换到水平方向。顶层(Layer 2)中还包括 MPC、中红外探测器(MCT)和透镜等。通过使用焦距为 200 mm 的模式匹配透镜将光束耦合进 MPC。通过调节平面镜 M3 和 M4 可微调光束的传播路径使得透镜的焦点处于

MPC 入口处。光束在 MPC 内反射 435 次后实现 54.6 m 有效光程。在出射端,光束经平面镜 M5 后通过焦距为 35 mm 的抛物面反射镜,最后汇聚到带有热电制冷功能的 MCT(Vigo, PVI-4TE-4)。实物图如图 1(b)所示。



(a)原理图

(a) Principle diagram



(b)实物图

(b) Physical map

图 1 双层结构传感器光学核

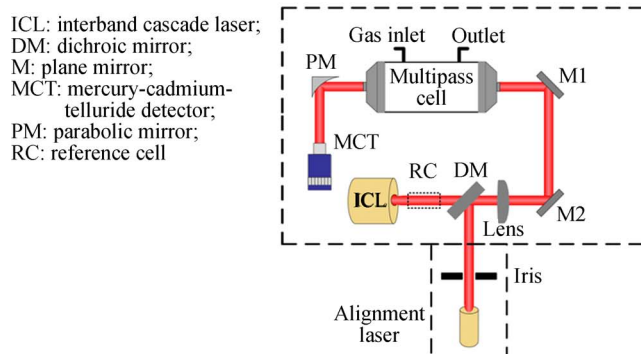
Fig. 1 Schematic of sensor optical core with two-floor structure

为进一步协助激光器散热,使用定制的铜制热交换器附属到立方体散热器上,使得传感平台能够与水冷系统相连。当此传感器工作在恶劣环境中时可以把水冷系统合并进来,例如高温环境($>40\text{ }^{\circ}\text{C}$)。

2.2 单层结构光学核设计

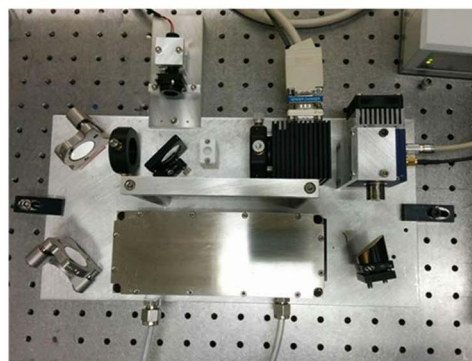
为进一步缩小传感器尺寸,提高系统结构设计的机械稳定性,使用双层结构中的几个相同光学组件设计单层结构传感器光学核,如图 2(a)所

示。将中心波长为 630 nm 的准直可见光源放置到子板上,在完成与中红外 ICL 光束耦合和系统光路调试的工作后可随时拆卸和安装,高效便捷。此子板可通过两个定位销与主板相连,可调光阑用以微调可见光斑的形态。主板上包含 ICL, MPC, MCT 和其它辅助光学元件。ICL 出射的中红外光束和准直激光器出射的可见光通过二向色镜耦合后,合束光通过使用匹配透镜被耦合进 MPC 内。M1 和 M2 平面镜将光束的方向转变



(a)原理图

(a) Principle diagram



(b)实物图

(b) Physical map

图 2 单层结构传感器光学核

Fig. 2 Schematic of sensor optical core with single-floor structure

180°, 目的在于给匹配透镜提供所需的 200 mm 距离, 同时又能通过折叠光路尽量减小光路部分所占用的空间。从 MPC 出射的准直 ICL 光束经焦距为 35 mm 抛物面镜后被汇聚到 MCT。此外, 此单层光学核在 ICL 和二相色镜之间加入了内嵌参考气室, 是系统提升的功能设计^[22-23]。ICL 和二向色镜中间增加的参考气室能在目标气体不存在的时候提供一个参考信号, 以实时地确定激光器的波长, 避免波长漂移。

经过安装和调试后的单层光学核的实物图如图 2(b)所示, 尺寸为 35.5 cm×18 cm×12.5 cm。此外, 大多数情况下此传感器不必使用水冷系统, ICL 可以在 TEC 的作用下工作在 5~15 °C。铜质热交换器在此单层传感器设计中并未使用。

2.3 控制单元和数据处理

由于这两个传感器都使用 TDLAS 测量方法, 故其光学核使用相同的控制单元, 如图 3 所示。对温度控制器进行编程以控制 ICL 温度, 电流驱动器提供 ICL 驱动电流。为了缩小控制单元的尺寸, 选择挪威 NEO Monitors 公司研制的小型低噪声激光器驱动板, 其尺寸为 10 cm×8 cm, 低噪声电流性能 $\leq 1 \text{ nA/Hz}^{\frac{1}{2}}$ 和片上 TEC 驱动器($\pm 3 \text{ A}$, 15 V)。使用配有 NI DAQ 采集卡(NI 6062 E)的笔记本电脑产生频率为 500 Hz、带有直流补偿的锯齿波信号。此补偿决定着 ICL 的中心波长, 而锯齿波信号用于扫描 ICL 中心波长。补偿的幅度取决于 ICL 的特性和目标吸收线的波长。连接 DAQ 采集卡的电脑同步获得来自 MTC 的光谱数据, 后者采样率为 250 kS/s。

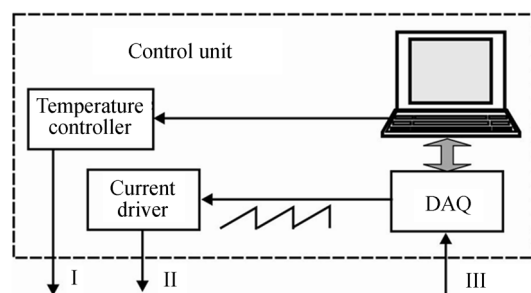


图 3 基于 TDLAS 传感系统的控制单元原理图

Fig. 3 Schematic of control unit of TDLAS based sensor system

数据处理过程如下: 首先, 通过使用数据采集卡以 500 Hz 频率扫描激光器电流以覆盖目标光谱区, 采集探测器输出并对 150 个光谱取平均。每个光谱含有 500 个数据点。为了获得光谱扫描的基线, 在平均谱中移动了吸收峰。随后, 其余数据点用五阶多项式拟合, 如图 4(a)所示。以基线拟合为基础, 可计算出吸收量, 然后使用从锗标准具条纹间距获得的二次多项式将它线性化。最后, 使用最小二乘拟合程序对线性化吸收进行 Voigt 线型拟合以重新得到目标气体浓度, 与文献[24]描述一致, 输出速率为 1 Hz。乙烷同步甲烷进行实时监测有利于提升被监测环境(例如: 天然气站和大气等)的分析准确性, 因此, 对多系统同时工作的功耗评估十分必要。最大的 TEC 功率损耗为 3 W, 使用 12 V 电源以兼容汽车电瓶电压, 激光器 60 mA 峰值电流对应的输出功率为 0.72 W。因此, 传感器光学核的总功耗约为 3.7 W。

3 传感光学核性能评估

3.1 双层光学核性能评估

基于双层光学核的 TDLAS 传感器配有中心波长为 3 291 nm 的 ICL 用于 CH₄ 探测。选择位于 3 038.5 cm⁻¹ 的无干扰吸收线作为目标线在环境中进行甲烷探测。通过 TEC 驱动器设置 ICL 温度为 30 °C, 2.1 V 直流补偿使能电流驱动器提供 42 mA 的恒定电流, ICL 输出功率为 1.5 mW。幅度为 0.4 V 的锯齿波信号使得 ICL 电流扫描从 39 mA 至 45 mA, 对应波长从 3 038 cm⁻¹ 至 3 039 cm⁻¹。从室内空气中获得的 150 次平均 CH₄ 光谱及其拟合基线如图 4(a)所示。吸收与波长的关系通过一个长 2.54 cm、自由光谱范围为 1.44 GHz 的锗标准具计算和线性化, 如图 4(b)所示。通过 Voigt 线型拟合复原了浓度信息。以这种方式获得的 CH₄ 浓度值为 4 μL/L。此外, 系统响应时间由气体流速和 MPC 容积(220 mL)共同决定, 对 0—100—0 μL/L 浓度变化的 CH₄ 传感器响应时间进行测试, 上升(10%~90%)和下降(90%~10%)阶段的响应时间分别为 67 s 和 50 s。

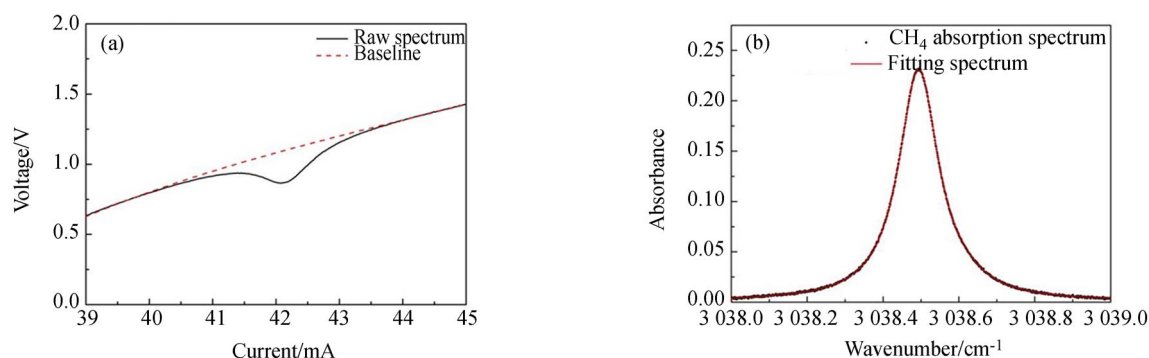


图4 (a) CH_4 在 3038.5 cm^{-1} 处的吸收线和拟合基线; (b) 计算的线性化吸收与使用 Voigt 线型拟合的波数的关系

Fig. 4 (a) CH_4 absorption line at 3038.5 cm^{-1} with a fitting baseline; (b) Calculated linearized absorbance as a function of wavenumber with a Voigt-line-shape fitting

3.2 单层光学核性能评估

基于单层光学核的 TDLAS 传感器配有中心波长为 3599 nm 的 ICL 用于 CH_2O 探测。使用 2781.0 cm^{-1} 吸收线用于 CH_2O 传感系统。ICL 的电流和温度分别在 36 mA 和 $35\text{ }^\circ\text{C}$ 时, 提供光功率约为 2.4 mW 。MPC 内压力降至 266.64 Pa , 以避免光谱重叠。锯齿波信号扫描 ICL 电流从

34 mA 至 38 mA , 对应波长从 2780.7 cm^{-1} 至 2781.3 cm^{-1} 。从已知 200 nL/L 标气中获得的 150 次平均 CH_2O 光谱及其拟合基线如图 5(a) 所示。标准 $\text{CH}_2\text{O}/\text{N}_2$ 混合气体从基于渗透管的痕量气体产生器 (Kin-Tek Laboratories, Inc., model 491M) 中获得。图 5(b) 显示了线性化的吸收和拟合光谱, 得到的测量值为 206 nL/L 。

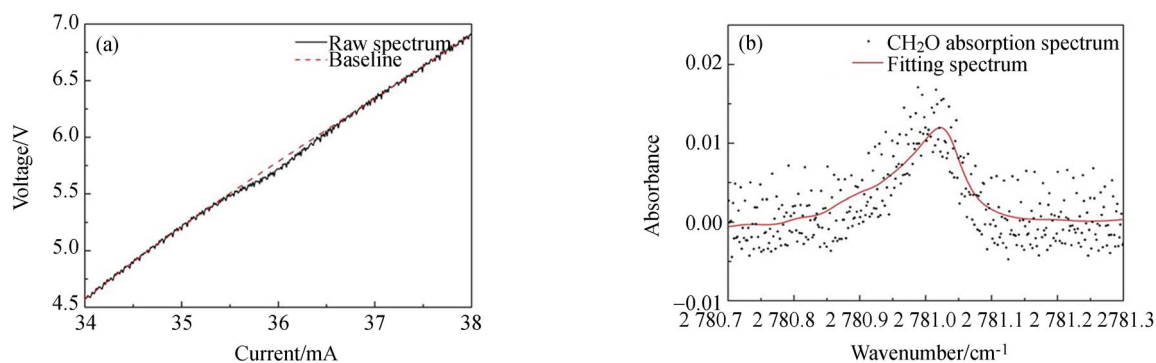


图5 (a) CH_2O 在 2781.0 cm^{-1} 处的吸收线和拟合基线; (b) 计算的线性化吸收与使用 Voigt 线型拟合的波数的关系

Fig. 5 (a) Raw CH_2O absorption line at 2781.0 cm^{-1} with a fitting baseline; (b) Calculated linearized absorbance as a function of wavenumber with a Voigt line shape fitting

为获得这两个 TDLAS 传感系统的探测极限, 将纯 N_2 引入系统中。积分时间为 1 s 时, CH_4 测量获得了约为 5 nL/L 的检测下限和 1.4 nL/L 的测量精度。而 CH_2O 测量获得了约为 3 nL/L 的检测下限和 1 nL/L 的测量精度。此外, 将单层 TDLAS 系统用于乙烷检测, 选用的无干扰乙烷吸收线 (气压 $\leq 13332\text{ Pa}$) 位于 3337 nm 。将两传感系统置于校园环境以评估其检

测性能, 如图 6(a) 所示。66 小时的甲、乙烷浓度测量结果如图 6(b) 所示。在此期间, 可明显观测到乙烷浓度的变化趋势与甲烷十分相似, 而且, 每日清晨时段二者均有不同程度的吸收峰出现。此次现场测试验证了设计的紧凑型中红外痕量气体检测系统能够稳定有效地工作, 基本满足目前民用气体测量的稳定可靠和高精度等要求。

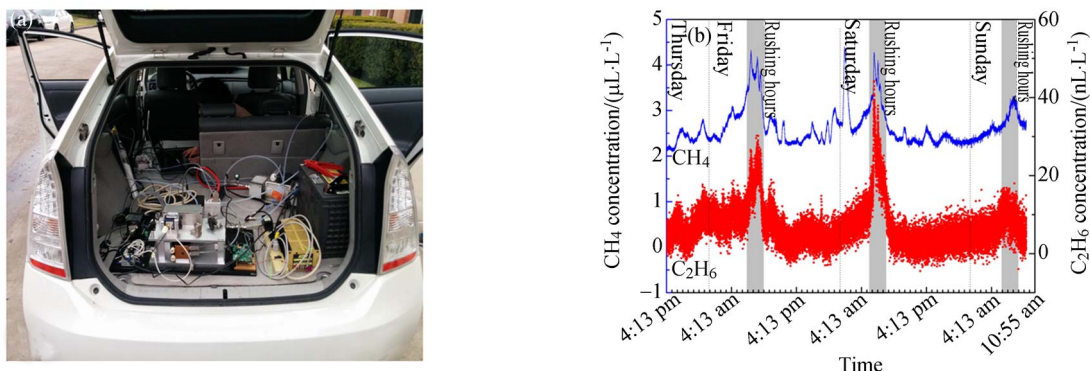


图 6 (a) 甲、乙烷系统校园环境监测照片;(b) 66 小时甲乙烷浓度的测量结果

Fig. 6 (a) Photograph of CH_4 , C_2H_6 measurement at campus; (b) Result of ~ 66 h CH_4 , C_2H_6 concentration measurement

4 结 论

本文设计和测试了两个基于 TDLAS 的气体传感光学核,使用紧凑型双层和单层结构设计,以达到低功耗高性能的目的。为了评估低功耗、高灵敏中红外 TDLAS 痕量传感系统的性能,二者均使用连续波、室温 ICL 和密集光斑 MPC。对于三维折叠式光路设计,光学核为双层结构,空间尺寸为 $32\text{ cm} \times 20\text{ cm} \times 17\text{ cm}$,此传感系统实现了

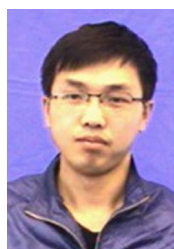
CH_4 浓度 nL/L 水平的高灵敏度测量。提升版本为单层结构,空间尺寸为 $35.5\text{ cm} \times 18\text{ cm} \times 8\text{ cm}$,约为双层结构的一半,实现了 CH_2O 浓度 nL/L 水平的高灵敏度探测,并应用于甲、乙烷浓度的实地检测。目前,主要的功率消耗来自 50 W 的笔记本电脑,将来的传感器升级可使用基于 ARM 微处理器的控制单元替代数据采集卡和电脑,这会显著减小传感系统尺寸,降低其功耗并延长电池寿命。

参考文献:

- [1] SCHIFF H. I., MACKAY G. I., BECHARA J. The use of tunable diode laser absorption spectroscopy for atmospheric measurements [J]. *Res. Chem. Intermed.*, 1994, 20(3):525-556.
- [2] KRAEMPEK K, LEWICKI R, NÄHLE L, *et al.*. Continuous wave, distributed feedback diode laser based sensor for trace gas detection of ethane [J]. *Appl. Phys. B*, 2012, 106(2):251-255.
- [3] KÖHRING M, HUANG S, JAHJAH M, *et al.*. QCL-based TDLAS sensor for detection of NO towards emission measurements from ovarian cancer cells [J]. *Appl. Phys. B*, 2014, 117(1):445-451.
- [4] LEE B H, WOOD E C, ZAHNISER M S, *et al.*. Simultaneous measurements of atmospheric HONO and NO_2 via absorption spectroscopy using tunable mid-infrared continuous-wave quantum cascade lasers [J]. *Appl. Phys. B*, 2010, 102(2):417-423.
- [5] MCMANUS J B, ZAHNISER M S, NELSON D D, *et al.*. Application of quantum cascade lasers to high-precision atmospheric trace gas measurements [J]. *Opt. Eng.*, 2010, 49(11):111124.
- [6] LIU K, WANG L, TAN T, *et al.*. Highly sensitive detection of methane by near-infrared laser absorption spectroscopy using a compact dense-pattern multipass cell [J]. *Sensor Actuat. B:Chem.*, 2015, 220: 1000-1005.
- [7] DURRY G, LI J S, VINOGRADOV I, *et al.*. Near infrared diode laser spectroscopy of C_2H_2 , H_2O , CO_2 and their isotopologues and the application to TDLAS, a tunable diode laser spectrometer for the martian PHOBOS-GRUNT space mission [J]. *Appl. Phys. B*, 2010, 99(1):339-351.
- [8] SUCHALKIN S, BELENKY G, BELKIN M A. Rapidly tunable quantum cascade lasers [J]. *IEEE J. Sel. Top. Quant. Elec.*, 2015, 21(6): 1200509.
- [9] VURGAFTMAN I, BEWLEY W W, CANEDY C L, *et al.*. Interband cascade lasers with low threshold power and high output powers [J]. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 2013, 19(4):1200210.

- [10] BAUER A, LANGER F, DALLNER M, *et al.*. Emission wavelength tuning of interband cascade lasers in the 3–4 μm spectral range [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2009, 95(25):251103.
- [11] CANEDY C L, KIM C S, MERRITT C D, *et al.*. Interband cascade lasers with >40% continuous-wave wallplug efficiency at cryogenic temperatures [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2015, 107(12): 121102.
- [12] NAHLE L, HILDEBRANDT L, KAMP M, *et al.*. ICLs open opportunities for mid-IR sensing [J]. *Laser Focus World*, 2013, 49:70–73.
- [13] HILDEBRANDT L, NAHLE L. DFB laser diodes expand hydrocarbon sensing beyond 3 μm [J]. *Laser Focus World*, 2012, 48: 87–90.
- [14] NGUYEN BA T, TRIKI M, DESBROSSES G, *et al.*. Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy sensor for ethylene detection with a 3.32 μm distributed feedback laser diode [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2015, 86(2):023111.
- [15] VURGAFTMAN I, BEWLEY W W, CANEDY C L, *et al.*. Rebalancing of internally generated carriers for mid-infrared interband cascade lasers with very low power consumption [J]. *Nat. Commun.*, 2011, 2:585.
- [16] KRZEMPEK K, JAHJAH M, LEWICKI R, *et al.*. CW DFB RT diode laser-based sensor for trace-gas detection of ethane using a novel compact multipass gas absorption cell [J]. *Appl. Phys. B*, 2013, 112(4):461–465.
- [17] OVERTON G. New multipass gas cells beat conventional designs [J]. *Laser Focus World*, 2013, 49:17.
- [18] BAMBERGER I, STIEGER J, BUCHMANN N, *et al.*. Spatial variability of methane: Attributing atmospheric concentrations to emissions [J]. *Environ. Pollut.*, 2014, 190: 65–74.
- [19] SMITH F A, ELLIOTT S, BLAKE D R, *et al.*. Spatiotemporal variation of methane and other trace hydrocarbon concentrations in the Valley of Mexico [J]. *Environ. Sci. Policy*, 2002, 5(6): 449–461.
- [20] LI J, PARCHATKA U, FISCHER H. A formaldehyde trace gas sensor based on a thermoelectrically cooled CW-DFB quantum cascade laser [J]. *Anal. Methods*, 2014, 6(15):5483–5488.
- [21] LUNDQVIST S, KLUCZYNSKI P, WEIH R, *et al.*. Sensing of formaldehyde using a distributed feedback interband cascade laser emitting around 3493 nm [J]. *Appl. Opt.*, 2012, 51: 6009–6013.
- [22] SUN K, TAO L, MILLER D J, *et al.*. Inline multi-harmonic calibration method for open-path atmospheric ammonia measurements [J]. *Appl. Phys. B*, 2013, 110(2):213–222.
- [23] TAO L, SUN K, MILLER D J, *et al.*. Low-power, open-path mobile sensing platform for high-resolution measurements of greenhouse gases and air pollutants [J]. *Appl. Phys. B*, 2015, 119(1):153–164.
- [24] REHLE D, LELEUX D, ERDELYI M, *et al.*. Ambient formaldehyde detection with a laser spectrometer based on difference-frequency generation in PPLN [J]. *Appl. Phys. B*, 2001, 72(8):947–952.

作者简介:



李春光(1986—),男,吉林长春人,助理研究员,2012年于长春理工大学获得硕士学位,2016年于吉林大学获得博士学位,现为吉林大学仪器科学与电气工程学院博士后,主要从事气体传感器和激光光谱方面的研究。E-mail: lcg0213@126.com

通讯作者:



林君(1954—),男,教授,博士生导师,1982年、1987年于长春地质学院分别获得学士、硕士学位,主要研究方向为地球探测技术及仪器。E-mail: lin_jun@jlu.edu.cn