第49卷第18期/2022年9月/中国激光

# 中国鼎光

# 面向天然气泄漏检测的中红外甲烷传感系统与应用

闫格<sup>1,2</sup>,张磊<sup>1,2</sup>,于玲<sup>1,2</sup>,宋芳<sup>1,2</sup>,郑传涛<sup>1,2\*</sup>,王一丁<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>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; <sup>2</sup>吉林省红外气体传感技术工程研究中心,吉林 长春 130012

**摘要** 甲烷(CH<sub>4</sub>)是天然气的主要成分,快速探测潜在的天然气泄漏、科学预防泄漏事故的发生是保障城市天然 气管道输运安全的关键。基于中红外可调谐半导体激光吸收光谱技术,研制了一种检测大气痕量甲烷的传感器系 统。采用中心波长为 3291 nm 的带间级联激光器作为光源,探测 CH<sub>4</sub> 位于 3038.5 cm<sup>-1</sup> 处的较强吸收峰。采用 有效光程为 26.4 m 的多通池作为气室,增强了气体吸收。采用波长调制光谱技术,降低了 CH<sub>4</sub> 检测下限。Allan 方差结果表明,当积分时间为 54 s时,系统的检测下限为 6.2×10<sup>-10</sup>。采用 LabVIEW 平台获取了浓度数据和天 气站数据,基于气体湍流模型,并结合粒子群优化算法,给出了一种移动式天然气泄漏源定位方法。利用所研制的 传感器系统,在吉林大学校园开展了大气甲烷移动监测实验和天然气泄漏源定位实验,验证了该传感器系统具有 较强的移动探测能力。研究结果为天然气泄漏快速溯源提供了一种有效途径。

关键词 传感器;红外光谱学;气体检测;车载移动测量;泄漏源定位 中图分类号 TN21 **文献标志码** A

# 1 引 言

甲烷(CH<sub>4</sub>)作为天然气的主要组成部分,其含量 (体积分数)超过 90%,是重要的化工原料和清洁能 源<sup>[1]</sup>。CH<sub>4</sub>具有无色、无味、易燃、易爆的特性,因此, 在无仪器监测的情况下,其泄漏很难被发现。当空气 中的 CH<sub>4</sub> 浓度达到一定的界限(体积分数为 5%~ 16%)时,遇到热源或明火就会发生燃烧甚至爆炸。另 外,CH<sub>4</sub> 是仅次于二氧化碳(CO<sub>2</sub>)的温室气体。虽然 CH<sub>4</sub> 在大气中的寿命相对较短,约为 12 年,但其在大 气中蓄热的能力是 CO<sub>2</sub> 的 28~34 倍<sup>[2]</sup>。因此,开发 一种可以实时监测大气 CH<sub>4</sub> 浓度的传感器系统对于 缓解气候变化、快速定位天然气泄漏源、减少生命财产 损失具有重要意义。

为了监测大气痕量 CH<sub>4</sub> 浓度的变化情况,传感器 系统必须具有较高的检测精度。可调谐半导体激光吸 收光谱(TDLAS)技术是一种较为成熟的红外光学气 体传感技术,因其痕量传感特性、非接触性、良好的气 体选择性、测量的原位实时性,受到了广泛关注<sup>[3-8]</sup>。 采用中红外波段的 CH<sub>4</sub> 分子基频吸收带,可以实现 10<sup>-9</sup> 量级的高精度实时监测<sup>[9-10]</sup>。在本课题组前期工 作中,报道了一种检测 CH<sub>4</sub> 的中红外 TDLAS 传感 器,其有效光程为 54.6 m,采用折叠式光路结构;当积 分时间为 2.5 s 时,CH<sub>4</sub> 的检测限为  $1.1 \times 10^{-8}$ ,实现 了较高的检测灵敏度<sup>[11]</sup>。

DOI: 10.3788/CJL202249.1810001

针对大范围、高效的大气 CH<sub>4</sub> 浓度实时在线监测 需求,开发便携、低成本的车载移动式传感器至关重 要。本文基于 TDLAS 技术,采用一种简单、稳定、紧 凑的直线式光路结构<sup>[12]</sup>,结合有效光程为 26.4 m 的 气室,研制了 CH<sub>4</sub> 实时在线光学检测系统。采用波长 调制光谱(WMS)法<sup>[13-18]</sup>提高了 CH<sub>4</sub> 检测的灵敏度并 降低了检测下限。传统的泄漏源定位方法是在目标点 附近布置多个传感器节点,成本相对较高,不利于推 广。本文基于 LabVIEW 数据处理平台,结合气体湍 流模型<sup>[19]</sup>和粒子群优化算法<sup>[20]</sup>,研究了一种移动式 天然气泄漏源定位方法。通过模拟天然气泄漏实验, 验证了传感系统和定位方法的可靠性和实用性。

#### 2 传感器设计与优化

#### 2.1 CH<sub>4</sub> 吸收线的选择

为了实现精度高、抗干扰能力强的红外吸收光谱气体传感,CH4 气体分子吸收线的选择至关重要。图 1 是基于高分辨率透射分子光谱数据库(HITRAN),在温度为 298 K、压强为 101.3 kPa、有效光程为 26.4 m 的条

通信作者: \*zhengchuantao@jlu.cdu.cn

收稿日期: 2021-12-06; 修回日期: 2022-01-07; 录用日期: 2022-01-17

基金项目:国家重点研发计划(2021YFB3201903)、国家自然科学基金(61960206004,62175087)、吉林省科技发展计划(20200401059GX)、吉林省教育厅科技发展规划项目(JJKH20211088KJ)、长春市重点研发项目(21ZGN24)、吉林大学科技创新团队项目(JLUSTIRT,2021TD-39)

#### 第 49 卷 第 18 期/2022 年 9 月/中国激光

件下,计算出浓度(体积分数,全文同)为1.8×10<sup>-6</sup>的 CH<sub>4</sub>和浓度为2%的H<sub>2</sub>O的吸收谱线。为了实现中红 外CH<sub>4</sub>的高精度检测,使用窄线宽、单频激发的带间级 联激光器(ICL)作为光源。图1(a)中虚线框标记的5根 单峰窄线宽吸收谱线是较好的选择。从图1(b)中可以 看出,只有3038.5 cm<sup>-1</sup>处的吸收线与H<sub>2</sub>O的吸收线 距离较远。图 1(c)为目标吸收线的细节图,可以看出, H<sub>2</sub>O 的吸收线相对平坦,相当于背景吸收线,在信号处 理中去除背景吸收后,水汽的吸收不会对甲烷检测造成 影响。然而,在实际应用中,如果水汽凝结在气室内壁 上,会影响光的反射,从而影响光程,进而影响检测结果, 因此在实验装置的气体预处理部分添加了除水装置。



图 1 当温度为 298 K、压强为 101.3 kPa、有效光程为26.4 m 时 CH<sub>4</sub> 和 H<sub>2</sub>O 的吸收谱线。(a)在 2870~3180 cm<sup>-1</sup> 范围内的 CH<sub>4</sub> 吸收谱线;(b)在 3025~3070 cm<sup>-1</sup> 光谱范围内的 CH<sub>4</sub> 和 H<sub>2</sub>O 吸收谱线;(c) 3038.5 cm<sup>-1</sup> 处的吸收谱线 Fig. 1 Absorption spectra of CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub>O at temperature of 298 K, pressure of 101.3 kPa, and effective optical path of 26.4 m. (a) CH<sub>4</sub> absorption spectrum in 2870-3180 cm<sup>-1</sup>; (b) absorption spectra in 3025-3070 cm<sup>-1</sup>; (c) absorption

#### 2.2 传感器设计

研制的 CH<sub>4</sub> 传感系统的整体结构如图 2 所示,包 括光学系统、气体取样系统和电学系统。光学系统由 中心波长为 3291 nm 的 ICL、有效光程为 26.4 m 的多 通池(MPGC)和热电制冷型碲镉汞(MCT)中红外探 测器组成。为了适应车载移动测量环境,采用了紧凑 稳定的直线型光路结构,即 ICL、MPGC 和探测器沿 直线排列。调节 ICL 出射光束的入射角度,使其直接 耦合进入 MPGC。其经过 215 次反射,有效光程达到 26.4 m,并被 CH<sub>4</sub> 吸收。MPGC 的出射光被焦距为 20 mm 的透镜会聚到探测器上。由于没有额外的光 学准直元件,传感器具有较小的体积和良好的机械稳 定性。

气体取样系统包括气体预处理部分和气路部分。 在传感器系统的气体入口处使用干燥过滤装置对气体 进行预处理,降低水汽和灰尘对传感器的影响。气路 部分由耐氟隆管和真空泵组成,实现气体的快速流通。 电学系统由电源模块、激光器驱动模块、基于数字信号 处理(DSP)的数字锁相放大器模块和主控模块组成。 采用自主研制的电压为12 V的直流转直流(DC-DC) 电源模块为系统供电。激光器驱动模块包括电流驱动 器和温度控制器,用于为激光器提供稳定的温度和驱 动电流。数字锁相放大模块具有两个功能:一是为激





光器驱动器提供驱动信号,即三角波扫描信号叠加高频正弦波调制信号;二是获取探测器输出信号,从中提取出二次谐波(2f)光谱信号,并将其发送至主控模块。 主控模块采集激光器电流和温度,并通过串口发送给 LabVIEW数据处理平台,用于监视系统,确保其运行 安全。

#### 第 49 卷 第 18 期/2022 年 9 月/中国激光

#### 2.3 LabVIEW 数据处理平台

基于 LabVIEW 的数据处理平台的界面如图 3 所示。该平台通过两个串口分别采集来自主控模块的浓度、激光器温度、电流数据和来自天气站模块的经度、 纬度、温度、风速、风向等数据,解析后显示在界面上。 根据经纬度数据,调用百度地图静态图应用程序接口 (API),将传感器位置实时显示在地图上。所有数据 都保存在文本里,以便处理与分析。结合浓度、经度、 纬度、风速、风向等数据,使用泄漏源定位算法,即可计 算出泄漏源位置,并在地图上显示出来。



图 3 LabVIEW 数据处理平台界面 Fig. 3 Interface of LabVIEW data processing platform

#### 2.4 调制深度优化

激光器需要在稳定的温度下工作,为了确定激光器的最佳工作温度,利用傅里叶变换红外光谱仪,测量 了激光器在不同温度、不同驱动电流条件下的发射波数,结果如图4所示。在发射波数一定的情况下,温度 越低,所需的驱动电流就越大。电流越大,激光器的功 率也就越大。但如果温度太低,激光器可以扫描的波 数范围就会变小,高频正弦波调制信号幅值的可调范 围随之变小,从而无法达到最佳调制深度。综合考虑, 选择激光器的工作温度为16 ℃。通过调节扫描电流, 将激光器调谐到特定波数,范围为 3037.8 ~ 3039.1 cm<sup>-1</sup>,且可覆盖 3038.5 cm<sup>-1</sup>(@50.7 mA)处 的 CH<sub>4</sub> 吸收线。为了获得最佳的调制深度,确定扫描 的电流范围为 46.1~54.3 mA,扫描频率为 5 Hz。



图 4 不同温度和电流下激光器的发射波数,插图为 16 ℃时不同驱动电流的 ICL 的发射光谱 Fig. 4 Emission wavenumbers of laser at different temperatures and currents with emission spectra of ICL under different driven currents at 16 ℃ shown in inset

#### 第 49 卷 第 18 期/2022 年 9 月/中国激光

理论上,光源调制信号的最佳调制深度为吸收峰 半峰半宽( $H_w$ )的 2.2 倍<sup>[21]</sup>。为了获得最优的调制深 度,实验中利用动态配气系统产生浓度为 2×10<sup>-6</sup> 的 CH<sub>4</sub>(用氮气稀释浓度为 5×10<sup>-5</sup> 的 CH<sub>4</sub>)样品并将其 通入 MPGC 中。记录不同调制振幅下的 2f 信号幅 值,如图 5 所示, a 点处的 2f 信号幅值最大,为 1.974 V,对应的调制深度为 0.235 cm<sup>-1</sup>,调制系数为 3.58。因此,在 CH<sub>4</sub> 传感系统中,使用幅值为 0.152 V的正弦波作为调制信号,可以获得传感器的 最佳性能。



图 5 调制深度优化 Fig. 5 Modulation depth optimization

# 3 传感器性能

为了提高检测精度并降低检测下限,使用波长 调制光谱技术测量 CH<sub>4</sub> 浓度。在传感器的性能测试 与评估中,为了探测位于 3038.5 cm<sup>-1</sup> 的 CH<sub>4</sub> 吸收 线,将激光器的工作温度设置为 16  $\mathbb{C}$ 。激光器的驱 动信号由 5 Hz 的三角波和 5 kHz 的正弦波叠加而 成,三角波的峰峰值为 0.85 V,正弦波的幅值为 0.152 V,直流偏置电压为 2.2 V。采用 LabVIEW 数据处理平台记录 2f 信号幅值,用于评估系统的 性能。

#### 3.1 标定和数据拟合

采用动态配气系统,使用浓度为 $5 \times 10^{-5}$  CH<sub>4</sub> 和 纯氮气(N<sub>2</sub>)配备了浓度在 $0 \sim 2 \times 10^{-6}$  范围内的 $5 \uparrow$ 不同浓度水平的 CH<sub>4</sub> 样品,步进为 $0.5 \times 10^{-6}$ 。对每 个 CH<sub>4</sub> 样品进行约 100 s 的测量,2f 信号幅值的测量 结果如图 6(a)所示。对每个 CH<sub>4</sub> 样品的 2f 信号幅值 进行平均处理,并线性拟合,如图6(b)所示。可以看



图 6 传感器系统的标定和拟合。(a)不同 CH<sub>4</sub> 浓度下测得的 2f 信号幅值(插图为 CH<sub>4</sub> 样品的 2f 光谱信号);(b) 2f 信号幅值 和 CH<sub>4</sub> 浓度的关系

Fig. 6 Calibration and fitting of sensor system. (a) 2f signal amplitudes recorded at different CH<sub>4</sub> concentrations with 2f spectral signals of five CH<sub>4</sub> samples shown in inset; (b) CH<sub>4</sub> concentration versus 2f signal amplitude

#### 第 49 卷 第 18 期/2022 年 9 月/中国激光

出,系统呈现良好的线性度(线性度为 $R^2 = 0.99645$ )。 CH<sub>4</sub>浓度的拟合式为

 $C_{CH_4} = (0.9305 \cdot x - 0.04738) \cdot 10^{-6}, \quad (1)$ 式中:x 为 2f 信号幅值。

# 3.2 稳定性和检测下限

为了衡量 CH<sub>4</sub> 传感器系统的稳定性和检测下限, 向气室内通入纯 N<sub>2</sub>,进行约 16 min 的测量,并记录 2f 信号幅值,结果如图 7(a)所示。CH<sub>4</sub> 浓度的波动范围 为  $5 \times 10^{-8} \sim 9 \times 10^{-8}$ 。根据该测量数据,采用 Allan 方差对 CH<sub>4</sub> 传感器的检测限进行了评估。图 7(b)为 计算得到的 Allan 方差曲线图。当积分时间小于 54 s 时,系统的噪声以高斯白噪声为主,增加积分时间可以 有效抑制高斯白噪声。Allan 方差曲线偏离高斯白噪 声线,这表明该系统并非只含有高斯白噪声,还存在其 他噪声(如光学、机械噪声)。当积分时间大于 54 s 时,系统开始发生漂移,检测下限增大,稳定性变差。 当积分时间为 0.5 s 时,检测限为 4.1×10<sup>-9</sup>。当积分 时间为 54 s 时,检测限为 6.2×10<sup>-10</sup>。



图 7 传感器的 Allan 方差分析。(a)将 N<sub>2</sub> 通入气室后测得的 CH<sub>4</sub> 浓度;(b) Allan 方差和积分时间 τ 的关系 Fig. 7 Allan deviation analysis of sensor. (a) CH<sub>4</sub> concentration measured by passing N<sub>2</sub> into gas cell; (b) Allan deviation versus averaging time τ

#### 3.3 响应时间

响应时间通常定义为浓度由 10% 变化到 90%的时间<sup>[22]</sup>,其大小取决于气室的结构、气体样品的流速和处理器的数据处理速度。实验中,先将空气通入 气室内一段时间,当测量显示的浓度稳定时,以 1000 mL/min的流速将纯  $N_2$  通入气室,直到气室中 CH<sub>4</sub> 的浓度为 0。测量结果如图 8 所示,仪器的响应 时间为 1.92 s,该响应时间有利于车载移动式大气 甲烷检测。

## 4 传感器的应用

#### 4.1 车载移动式大气甲烷监测

如图 9(a)所示,将 CH<sub>4</sub> 传感器系统放置在校园 巴士上,以全面评估其对大气 CH<sub>4</sub> 浓度的移动检测 性能。为了更好地适应移动车辆多尘、潮湿的测量 环境,在气体入口处安置了干燥过滤系统进行除尘 除湿。整个系统由车载蓄电池供电。在本次实验 中,采用全球定位系统(GPS)模块连续记录传感器 系统的位置。每秒记录一次现场测量数据(即CH<sub>4</sub>



Fig. 8 Response time measurement of sensor

浓度和 GPS 坐标)。图 9(b)、(c)为车辆移动期间检 测到的 CH<sub>4</sub> 浓度的时空分布图。可以看出,吉林大 学校园内的大气 CH<sub>4</sub> 浓度范围为 2.04×10<sup>-6</sup> ~ 2.16×10<sup>-6</sup>。





#### 4.2 天然气泄漏源定位

基于 LabVIEW 数据处理平台,结合气体湍流模 型和粒子群优化算法,在吉林大学校园内对模拟的 CH₄泄漏进行了现场测试。如图 10(a)所示,将 CH₄ 传感器系统安置在推车上,由+12 V 蓄电池供电。使 用体积分数为 1%的甲烷气瓶模拟天然气泄漏源。围 绕着泄漏源,采用甲烷气体传感器系统检测 CH₄ 浓 度,使用天气站模块采集经度、纬度、风速、风向、温度 等环境数据。现场环境温度为 8 ℃,风速为 3.5 m/s, 风向为东北风。图 10(b)为测试期间 CH₄ 浓度的变 化情况。结合测量的浓度和环境数据,采用气体湍流 模型模拟二维平面上的天然气泄漏情况。利用粒子群 优化算法,通过测量值和模拟值的差值建立适应度函 数以评价粒子位置的好坏。首先利用 GPS 测量得到 的传感器位置初始化粒子群的速度和位置,通过迭代 搜索个体极值点和全局极值点来更新当前的速度和位 置,直到输出全局最优解,得到泄漏位置的估计结果。 如图 10(c)所示,定位误差为 3.43 m。该实验结果表 明,所研制的传感器系统在天然气泄漏等实际检测中 具有良好的应用前景。

### 5 结 论

基于中红外可调谐半导体激光吸收光谱技术,研制了一种检测大气痕量甲烷的传感器系统。该系统具 有稳定性强、便携、灵敏度高、原位实时测量的特点。 对调制深度进行了优化,最佳调制深度为 0.235 cm<sup>-1</sup>。当积分时间为54 s时,系统的检测下限 为6.2×10<sup>-10</sup>。在吉林大学校园内开展了移动监测实 验,验证了该传感器系统用于大气甲烷浓度监测的稳 定性。基于 LabVIEW 数据处理平台,结合气体湍流 模型和粒子群定位算法,开展了甲烷泄漏源的定位实 验,进一步证明了该系统的可靠性和实用性。



#### 图 10 CH<sub>4</sub> 泄漏源的定位实验。(a)实验照片;(b)测得的浓度时域分布图;(c)泄漏源定位结果

Fig. 10 Location experiment of CH<sub>4</sub> leakage source. (a) Experimental photograph; (b) measured concentration versus observation time; (c) location result of leakage source

#### 参考文献

- Wu H P, Dong L, Yin X K, et al. Atmospheric CH<sub>4</sub> measurement near a landfill using an ICL-based QEPAS sensor with V-T relaxation self-calibration [J]. Sensors and Actuators B: Chemical, 2019, 297: 126753.
- [2] Environmental Protection Agency. Global methane emissions and mitigation opportunities[R]. Washington, D.C.: EPA, 2020.
- [3] Lancaster D G, Dawes J M. Methane detection with a narrowband source at 3.4 μm based on a Nd: YAG pump laser and a combination of stimulated Raman scattering and difference frequency mixing [J]. Applied Optics, 1996, 35 (21): 4041-4045.
- [4] Fischer C, Sigrist M W. Trace-gas sensing in the 3.3-µm region using a diode-based difference-frequency laser photoacoustic system[J]. Applied Physics B, 2002, 75(2/3): 305-310.
- [5] Shao L G, Fang B, Zheng F, et al. Simultaneous detection of atmospheric CO and CH<sub>4</sub> based on TDLAS using a single 2.3 μm DFB laser[J]. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 2019, 222: 117118.
- [6] 阚瑞峰,刘文清,张玉钧,等.可调谐二极管激光吸收光谱法监测环境空气中甲烷的浓度变化[J].中国激光,2005,32(9):

#### 1217-1220.

Kan R F, Liu W Q, Zhang Y J, et al. Tunable diode laser absorption spectrometer monitors the ambient methane with high sensitivity [J]. Chinese Journal of Lasers, 2005, 32(9): 1217-1220.

- [7] Zheng F, Qiu X B, Shao L G, et al. Measurement of nitric oxide from cigarette burning using TDLAS based on quantum cascade laser [J]. Optics & Laser Technology, 2020, 124: 105963.
- [8] 王鑫, 荆聪蕊, 侯凯旋, 等. 基于 TDLAS 技术的人体呼气末 CO<sub>2</sub> 在线检测[J]. 中国激光, 2020, 47(3): 0311002.
   Wang X, Jing C R, Hou K X, et al. Online detection of humanexhaled end-tidal carbon dioxide using tunable semiconductor absorption spectroscopy[J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(3): 0311002.
- [9] Zheng C T, Ye W L, Sanchez N P, et al. Infrared dual-gas  $CH_4/C_2H_6$  sensor using two continuous-wave interband cascade lasers[J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2016, 28(21): 2351-2354.
- [10] Li C G, Zheng C T, Dong L, et al. ppb-level mid-infrared ethane detection based on three measurement schemes using a 3.34-µm continuous-wave interband cascade laser[J]. Applied

#### 第 49 卷 第 18 期/2022 年 9 月/中国激光

- Physics B, 2016, 122(7): 185.
- [11] 郑文雪,郑传涛,姚丹,等.一种中红外带间级联激光甲烷传感器的研制[J].光学学报,2018,38(3):0328013.
  Zheng W X, Zheng C T, Yao D, et al. Development of a mid-infrared interband cascade laser methane sensor[J]. Acta Optica Sinica, 2018, 38(3):0328013.
- [12] Liu Z W, Zheng C T, Chen C, et al. ICL-based mid-infrared carbon dioxide sensor system for deep-sea natural gas hydrate exploration[J]. Optics Express, 2019, 27(4): 5598-5609.
- [13] Zhang L W, Pang T, Zhang Z R, et al. A novel compact intrinsic safety full range Methane microprobe sensor using "trans-world" processing method based on near-infrared spectroscopy[J]. Sensors and Actuators B: Chemical, 2021, 334: 129680.
- [14] Sommer D E, Yeremi M, Son J, et al. Characterization and reduction of in-use CH<sub>4</sub> emissions from a dual fuel marine engine using wavelength modulation spectroscopy [J]. Environmental Science & Technology, 2019, 53(5): 2892-2899.
- [15] 周言文, 苗澍茁, 姚丹, 等. 基于波长调制光谱和小波去噪的激光甲烷遥测系统[J]. 中国激光, 2020, 47(6): 0611001.
  Zhou Y W, Miao S Z, Yao D, et al. Laser methane remote sensor system based on wavelength modulation spectroscopy and wavelet denoising[J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(6): 0611001.
- [16] Zheng K Y, Zheng C T, Yao D, et al. A near-infrared  $C_2 H_2/CH_4$  dual-gas sensor system combining off-axis integrated-cavity output spectroscopy and frequency-division-multiplexing-based

wavelength modulation spectroscopy [J]. The Analyst, 2019, 144(6): 2003-2010.

- [17] 庄欠瑶,周宾,王一红,等.基于固定点波长调制光谱技术的气体浓度测量方法[J].光学学报,2021,41(23):2330001.
   Zhuang Q Y, Zhou B, Wang Y H, et al. Gas concentration measurement method based on fixed wavelength modulation spectroscopy[J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(23):2330001.
- [18] 屈东胜,樊宏杰,刘连伟,等.基于近红外光谱的超声速燃烧场 气体参数测量研究[J].光学学报,2020,40(3):0330001.
   Qu D S, Fan H J, Liu L W, et al. Measurement of gas parameters in supersonic combustion field based on near-infrared spectroscopy[J]. Acta Optica Sinica, 2020, 40(3):0330001.
- [19] 杨硕. 红外气体传感信号处理算法研究[D]. 长春:吉林大学, 2020.
   Yang S. Research on signal processing algorithm of infrared gas
- sensor[D]. Changchun: Jilin University, 2020.
  [20] Ma T, Liu S H, Xiao H P. Location of natural gas leakage sources on offshore platform by a multi-robot system using particle swarm optimization algorithm [J]. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2020, 84: 103636.
- [21] Liu K, Liu T G, Jiang J F, et al. Investigation of wavelength modulation and wavelength sweep techniques in intracavity fiber laser for gas detection [J]. Journal of Lightwave Technology, 2011, 29(1): 15-21.
- [22] Song F, Zheng C T, Yu D, et al. Interband cascade laser-based ppbv-level mid-infrared methane detection using two digital lockin amplifier schemes[J]. Applied Physics B, 2018, 124(3): 51.

# Mid-Infrared Methane Sensor System for Natural Gas Leakage Detection and Its Application

Yan Ge<sup>1,2</sup>, Zhang Lei<sup>1,2</sup>, Yu Ling<sup>1,2</sup>, Song Fang<sup>1,2</sup>, Zheng Chuantao<sup>1,2\*</sup>, Wang Yiding<sup>1,2</sup> <sup>1</sup>State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, Jilin, China;

<sup>2</sup> Jilin Provincial Engineering Research Center of Infrared Gas Sensing Technique, Changchun 130012, Jilin, China

#### Abstract

**Objective** Methane (CH<sub>4</sub>) is the primary component of natural gas, accounting for more than 90% of it. CH<sub>4</sub> is a colorless, odorless, flammable, and explosive gas. It is a safety hazard during the production and transportation of natural gas, coal, and oil. CH<sub>4</sub> leakage is difficult to detect and can result in suffocation or even death. When the CH<sub>4</sub> concentration(volume fraction) in the air reaches a certain limit (5%-16%), it can cause combustion and explosion in the presence of a heat source or open fire. According to the data from the U.S. Environmental Protection Agency in 2020, CH<sub>4</sub> is a strong, short-term greenhouse gas with a rapid warming effect, accounting for 20% of global emissions, ranking second only to carbon dioxide (CO<sub>2</sub>). Although CH<sub>4</sub> exists in the atmosphere for only approximately 12 years, its heat storage capacity in the atmosphere is 28–34 times that of CO<sub>2</sub>. Therefore, the development of a CH<sub>4</sub> sensor system for real-time monitoring of CH<sub>4</sub> concentration is essential for mitigating climate change, finding the sources of natural gas leakage quickly, and minimizing the loss of life and property.

**Methods** The selection of gas detection technology is essential for detecting trace concentrations of  $CH_4$  in the atmosphere. In terms of time resolution, size, and cost, optical methods based on mid-infrared laser spectroscopy are advantageous for  $CH_4$  sensing. Tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS) is demonstrated to be an excellent tool for trace gas detection because of its high sensitivity, selectivity, and real-time performance. In this paper, a mid-infrared  $CH_4$  sensor system is developed based on TDLAS. The light source is an interband cascade laser that is used to target the absorption line of  $CH_4$  at 3038.5 cm<sup>-1</sup>. For gas absorption enhancement, a multi-pass gas cell with an effective optical path of 26.4 m is used. To increase detection range and sensitivity, the wavelength modulation spectroscopy (WMS) scheme is used. The optical structure is simple, stable, and compact, making it ideal for vehicle-borne movement measurement. A mobile natural gas leakage source location method based on the LabVIEW data processing platform along

with the gas turbulence model and particle swarm optimization algorithm is developed. Vehicle-borne movement measurement and leakage source location experiments are performed on Jilin University campus using the  $CH_4$  sensor system to validate its practical applicability.

**Results and Discussions** The modulation depth optimization experiment is performed to optimize the sensor's performance, and the optimal modulation depth is  $0.235 \text{ cm}^{-1}$  (Fig. 5). To evaluate the stability of the CH<sub>4</sub> sensor, pure N<sub>2</sub> is measured for approximately 16 min using the WMS scheme. The Allan variance is used to calculate the detection limit of the CH<sub>4</sub> sensor based on the measured data. The detection limit is  $4.1 \times 10^{-9}$  with the average time of 0.5 s, and the optimal detection limit is  $6.2 \times 10^{-10}$  with the average time of 54 s (Fig. 7). The CH<sub>4</sub> sensor has the response time of 1.92 s (Fig. 8). The results of the vehicle-borne movement measurement experiment show that the atmospheric CH<sub>4</sub> concentration range is  $2.04 \times 10^{-6}$ – $2.16 \times 10^{-6}$  (Fig. 9). The field testing is conducted to validate the effectiveness of the mobile natural gas leakage source location method. The localization error is 3.43 m.

**Conclusions** This study demonstrates a promising method for detecting trace  $CH_4$  concentrations in the atmosphere and identifying the source of natural gas leakage for field applications. The experimental results demonstrate that the proposed method has promising future application in the detection of natural gas leakage.

Key words sensors; infrared spectroscopy; gas detection; vehicle-borne movement measurement; leakage source location