

氢气泄漏拉曼激光雷达遥测技术研究进展

邓金睿^{1*}, 姜瑞景¹, 钟海², 张皓翔³, 崔柳华³, 蔡磊³¹中国石油集团安全环保技术研究院有限公司, 北京 102206;²中国石油西南油气田公司安全环保与技术监督研究院, 四川 成都 610041;³中国石油大港石化公司, 天津 300280

摘要 氢气物性活泼, 容易泄漏引发着火爆炸事故。在布置点型氢气传感器的基础上, 通过拉曼激光雷达遥测技术加强氢气泄漏非接触式远距离、大覆盖面检测, 能够为氢能利用场景多元化的高速发展和保障氢能安全高效利用提供支撑。首先概述了气体拉曼散射基本原理, 其次从系统结构和检测效果两方面介绍了国内外氢气泄漏拉曼激光雷达遥测技术的研究进展, 最后对拉曼激光雷达遥测技术在氢气泄漏检测方面的应用进行了展望。

关键词 遥感; 激光雷达; 反向散射; 拉曼效应; 氢气泄漏

中图分类号 P407.5

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP230586

Advancements in Remote Raman-Lidar for Hydrogen Leakage Detection

Deng Jinrui^{1*}, Jiang Ruijing¹, Zhong Hai², Zhang Haoxiang³, Cui Liuhua³, Cai Lei³¹CNPC Research Institute of Safety & Environment Technology, Beijing 102206, China;²Safety, Environment, and Technology Supervision Research Institute of Petrochina Southwest Oil & Gasfield Company, Chengdu 610041, Sichuan, China;³Petro China Dagang Petrochemical Company, Tianjin 300280, China

Abstract Hydrogen possesses highly reactive physical properties, which may lead to fire and explosion accidents in cases of leakage. Based on the arrangement of point-type hydrogen sensors, employing Raman-Lidar telemetry technology can enhance noncontact, remote, and large-coverage detection of hydrogen leakage, thereby facilitating the rapid development of diversified hydrogen energy utilization scenarios and ensuring the safe and efficient utilization of hydrogen energy. First, an overview of the fundamental principles of gas Raman scattering is provided. Second, the research progress in Raman-lidar telemetry technology for hydrogen leakage is examined, both domestically and internationally, from two aspects: system structure and detection effect. Finally, the prospective applications of Raman-lidar telemetry technology in hydrogen leakage monitoring and detection are studied.

Key words remote sensing; lidar; backscattering; Raman effect; hydrogen leakage

1 引言

温室气体大量排放造成的环境污染和化石燃料过度消耗引发的能源枯竭问题迫使全球能源结构向绿色低碳转型发展。氢能作为一种零碳、可再生的二次清洁能源, 其能源结构转型载体的战略地位得到世界多国的高度共识。国际能源署(IEA)发布的《Global Hydrogen Review 2022》中指出: 2021年氢能需求量为9400万吨, 在全球终端能源消耗中占比2.5%; 结合世界各国政府

已经制定的政策和措施, 预计到2030年氢能需求量将达到每年1.15亿吨, 按照目前世界各国政府给出的气候承诺来看, 实际需求量需达到1.3亿吨, 其中, 25%来自冶金、交通、电力等新应用领域; 要实现2050年净零排放目标, 到2030年则需要达到每年近2亿吨^[1]。

氢能是氢气和氧气发生化学反应释放的化学能, 氢气物性活泼, 具有密度小、点火能量低、扩散系数大、渗透能力强、爆炸范围宽等特点, 在氢能产业链逐步完善、市场规模高速增长的同时, 氢气在制取、储存、运

收稿日期: 2023-02-06; 修回日期: 2023-02-20; 录用日期: 2023-02-22; 网络首发日期: 2023-03-09

基金项目: 中国石油天然气集团有限公司技术攻关项目(2021DJ6501)、中国石油集团安全环保技术研究院有限公司技术攻关项目(RISE2022KY11)

通信作者: *cnpdengjinrui@163.com

输、利用过程中容易因性质不稳定引发泄漏、着火、爆炸事故,安全风险突出。近年来,多国已发生数起加氢

站、氢燃料储罐、石化临氢装置泄漏爆炸事故(如表 1 所示),造成人员伤亡、重大财产损失。

表 1 典型氢泄漏事故案例

Table 1 Typical accident cases caused by hydrogen leakage

No.	Date	Accident case
1	2019-05	Two people had been killed and four others had been injured in an explosion of a hydrogen fuel tank in city of Gangneung, Republic of Korea
2	2019-06	An explosion of high-pressure hydrogen storage tank happened because of the misassembly at the Uno-X hydrogen fueling station in Sanvika, Norway
3	2019-06	A leak explosion of hydrogen storage tank happened at Silicon Valley Air Chemical Product in California, America
4	2019-12	A fiery explosion happened at hydrogen storage area of Airgas in Waukesha, America
5	2020-04	An explosion at a hydrogen fuel cell plant of OneH ₂ happened in North Carolina, America
6	2020-07	A fire accident of hydrogen filling leakage happened at Grand Resource Co., Ltd. in Dongguan, China
7	2021-07	Doyle nuclear power plant of Engie Electrabel had been shut down due to the hydrogen leak
8	2021-08	A burning explosion accident of hydrogen tank truck happened because of the hose burst in Shenyang, China
9	2021-12	A fiery explosion of residual oil-hydrogenation unit happened in Yunnan, China
10	2022-04	Hydrogen gas leak and a flash fire accident happened in continuous catalytic reforming unit of Shengli Refinery in China

上述这些典型事故暴露出氢气泄漏实时监测滞后、预警能力不足等问题,因此,在加强氢能产业链设备设施本质安全的同时,氢气浓度检测已成为保障氢能安全的一项重要支撑技术。现有 H₂ 气体泄漏监测技术主要有接触式 H₂ 气体传感器和基于拉曼光谱技术的非接触式 H₂ 气体检测两大类。从成本、使用工况、适用场景、监测精度、分辨率、时效性和覆盖面这几个方面考虑,上述两类检测技术各自特点突出,也各有优劣。关于接触式 H₂ 气体传感器,许多综述类文献^[2-6]已经报道了催化燃烧型、电化学型、电阻型、光学型等传感器的原理、技术发展及应用现状。拉曼激光雷达遥测技术在危险品、违禁品、生化学战剂品等检测领域应用广泛:张艳等^[7]综述了生物/化学战剂激光遥测主要技术的原理、特点和发展趋势;赵家炜等^[8]系统综述了远程增强拉曼光谱的技术原理、检测系统和其在爆炸物、毒品等检测领域的应用;郭一新等^[9]综述了国内外可见光或近红外激光以及紫外激光拉曼光谱遥测技术发展现状;狄慧鸽等^[10]综述了激光雷达在云参数探测中的主要技术及其研究进展;龚威等^[11]系统综述了新型高光谱激光雷达的激光发射单元、接收探测单元和数据处理单元的发展;张汉熠等^[12]重点综述了基于微弱光探测的单光子激光雷达系统与图像重建算法;宋召奇等^[13]结合城市安防和工业安全领域不同安防需求,从测距方案、扫描方式和光源选型方面介绍了激光雷达的应用现状。但是,目前还没有检索到有关拉曼激光雷达遥测技术在 H₂ 气体泄漏非接触式检测方面的综述类文献。

本文概述了气体拉曼散射基本原理,梳理归纳了国内外 H₂ 气体泄漏拉曼激光雷达遥测技术与系统研究进展,并提出展望,以期能够为石化、冶金、交通、电

力等行业构建及时、准确的 H₂ 气体泄漏监测预警系统提供思路,保障氢能安全高效利用。

2 气体拉曼散射光谱及气体浓度激光雷达遥感原理概述

2.1 气体拉曼散射光谱原理概述

H₂ 在近紫外到近红外区没有吸收带,使得吸收激光诱导荧光、差分吸收激光雷达、傅里叶变换红外光谱等传统光学方法无法检测 H₂, H₂ 的主要电子跃迁 [X¹Σ_g⁺ - B¹Σ_u⁺ 赖曼 (Lyman) 谱线, X¹Σ_g⁺ - C¹Π_u 沃纳 (Werner) 谱线] 位于真空紫外区,这种波长的光不会通过空气传播,因而不能用于远程检测^[14]。然而, H₂ 具有强烈的拉曼效应,拉曼散射光谱技术为 H₂ 气体泄漏非接触式检测提供了便利。

气体受到激光照射时,光子与气体分子发生碰撞产生弹性散射(无能量变化)和非弹性散射(能量变化)。大多数光子发生弹性散射(瑞利散射、米氏散射等),散射的光子具有与入射光子相同频率和波长。小部分光子以与入射光子的原始频率不同的频率散射,拉曼散射的光子相对于入射光子发生频率偏移,分子的能量吸收引起斯托克斯散射,分子的能量损失产生反斯托克斯散射。相比较入射光的波长,斯托克斯散射波长较长,反斯托克斯散射波长较短,如图 1(a)所示。

由于光子与气体分子相互作用中光子能量的吸收和辐射与电子的能级差相匹配,如图 1(b)所示,并且对于同一种气体分子来说,两种状态之间的能量差是确定的,因此拉曼信号 $\Delta\omega_R$ 的频移及强度可以定性和定量分析气体分子,例如 355 nm 入射激光照射下,部分气体分子的拉曼散射波长如表 2 所示。

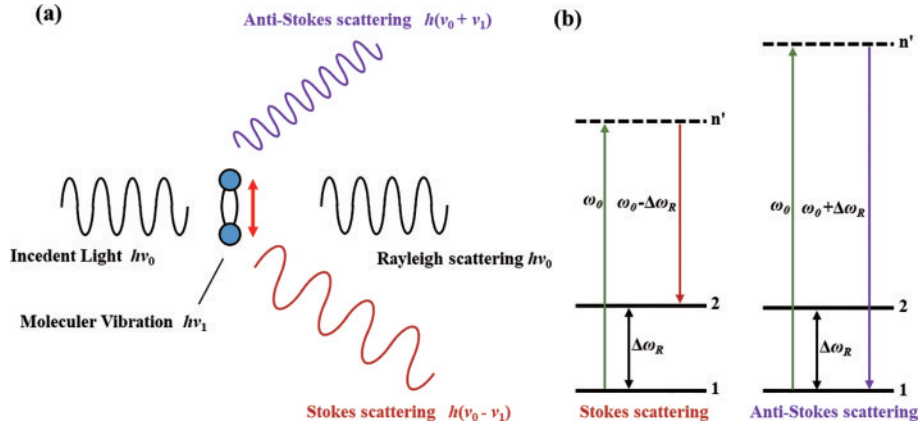


图 1 散射图。(a)拉曼散射示意图^[15];(b)斯托克斯-拉曼散射与反斯托克斯-拉曼散射的线性拉曼效应示意图^[16]
Fig. 1 Scattering diagrams. (a) Schematic of Raman scattering^[15]; (b) schematic of the linear Raman effect for Stokes Raman scattering and anti-Stokes Raman scattering^[16]

表 2 气体拉曼散射波长和拉曼反向散射截面(r,转动拉曼散射;v,振动拉曼散射)^[17-18]

Table 2 Raman scattering shift, wavelength and Raman back scattering cross section by laser irradiated to some gases (r, rotational mode; v, vibrational mode)^[17-18]

Gas	Raman shift /cm ⁻¹	Raman scattering wavelength /nm	Cross section / (10 ⁻³⁰ cm ² ·sr ⁻¹)
CO ₂	1388 ^v	373.1	
O ₂	1555 ^v	375.4	2.68
CO	2143 ^v	383.9	
N ₂	2331 ^v	386.7	2.28
H ₂ S	2601 ^v	390.9	
CH ₄	2917 ^v	395.6	26.2
H ₂	4156 ^v	416.1	7.07
	587 ^r	362.2	

2.2 气体浓度激光雷达遥感原理概述

典型的拉曼激光雷达遥测气体浓度系统和方法示意图如图 2 所示。脉冲激光器发射的激光经准直后照射到泄漏气体云团,激光光子与气体分子碰撞产生振动或转动拉曼散射光。通过接收的反向斯托克斯或反斯托克斯拉曼散射回波信号和强度来定性和定量检测气体种类及浓度,且气体浓度越高,其拉曼回波信号越强。因此,以大气中含量较稳定的 N₂ 气体反向拉曼散射信号强度作为基准值,通过激光雷达方程得到目标泄漏气体的浓度。

Asahi 等^[14]介绍了一种利用拉曼激光雷达同时测

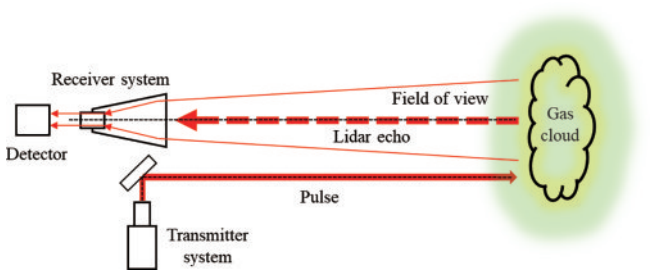


图 2 典型的拉曼激光雷达遥测气体浓度的系统和方法示意图
Fig. 2 Schematic diagram of typical remote Raman lidar system and method for gas concentration detection

量泄漏到空气中的 H₂ 和 N₂ 的拉曼散射信号,并根据信号的比值获得了 H₂ 浓度的方法,其中,双轴激光雷达的几何形状因子和仪器功能被取消,具体计算如下。

由激光雷达方程(1)可以得到斯托克斯拉曼回波信号的强度:

$$\begin{cases} S(r) = \eta P_0 K Y(r) A \frac{1}{r^2} \frac{c\tau}{2} N \sigma T(r), \\ T(r) = \exp[-(\alpha_L + \alpha_R)r] \end{cases} \quad (1)$$

式中:η为探测器的光子效率;P₀为激光功率;K为集光光学系统的效率;Y(r)为发射激光束与光接收器视场的重叠函数;A为光接收器的受光面面积;r为距离;N为气体密度;σ为拉曼散射截面;c为光速;τ为激光脉冲宽度;α_L为消光系数;α_R为拉曼散射光的消光系数。

在近场的情况下,H₂和N₂的拉曼散射光消光系数与r的乘积几乎等于0,因此可以将透射率T(r)设置为1。

基于式(1),H₂和N₂的拉曼信号之比S_H(r)/S_N(r)为

$$\begin{cases} S_H(r)/S_N(r) = (N_H/N_N)/C \\ C = (\eta_N \cdot K_N \cdot \sigma_N) / (\eta_H \cdot K_H \cdot \sigma_H) \end{cases} \quad (2)$$

式中:C是常数。因此,当H₂的浓度低于N₂浓度80%时,目标气体的浓度N_H的空间分布可以由S_H(r)/S_N(r)给出。

3 国内外 H₂ 气体泄漏拉曼激光雷达遥测系统研究进展

拉曼激光雷达系统是实现 H₂ 气体遥感探测技术之一,它能够远程测量 H₂ 气体分布范围和 H₂ 气体浓度。典型的拉曼激光雷达系统主要包含激光发射单元、光学接收单元和电子电路单元,其中,产生拉曼信号的激光功率、激光重复频率和光学接收器直径等对拉曼激光雷达系统的 H₂ 气体遥测性能影响较大。由于气体拉曼散射信号弱,容易受到泵浦激光、激光诱导荧光信号、环境背景荧光等干扰,加之小型化拉曼激光雷达系统的发展趋势,研发低激光输出能量、高信噪比的拉曼激光雷达系统成为必然,其关键在于开发性能优异的数字信号转换器。本综述将拉曼激光雷达系统分为使用高速数字转换器的系统和使用光子计数器的系统两大类。

3.1 高速数字转换器拉曼激光雷达系统

对于用于检测氢气的拉曼雷达系统,1997 年起 Privalov 等^[19-21]对多种类型的激光雷达方程进行了数值求解,并确定了拉曼激光雷达技术在远距离探测低浓度 H₂ 气体方面具有优势。2000 年,Verem'ev 等^[17]数值求解了用于远程检测大气中 I₂ 和 H₂ 分子及其同位素的拉曼反向散射激光雷达方程,验证了通过优化半导体激光器波长可以实现远距离探测大气中的 I₂ 和 H₂ 分子。

2002 年,Vasa 等^[22]提出一种不需要可调谐激光器的非线性受激拉曼增益光谱(SRGS)激光雷达系统方案,用于大气中 CO₂、CH₄ 和 H₂ 气体遥感。图 3 显示了不使用可调谐激光器受激拉曼增益的原理,泵浦波 ω_p 从倍频 Nd:YAG 激光器通过含有待测高压气体的拉曼转换器,斯托克斯波 ω_s 由拉曼转换器自动产生,使得差频 $\omega_p - \omega_R$ 调谐到拉曼移位频率 ω_R 。对于相同的气体,来自拉曼移位器的输出波 ω_p 和 ω_s 穿过样品气室,并观察到受激拉曼增益。在样品气室中, ω_p 波和 ω_s 波的时间和空间匹配对于有效的受激拉曼增益至关重要,但是没有相位匹配要求。因此,研究人员将样品气室替换为开放大气,并将受激拉曼增益技术与大气米散射作为分布镜相结合,构建了受激拉曼增益光谱激光雷达系统,系统示意图如图 4 所示。

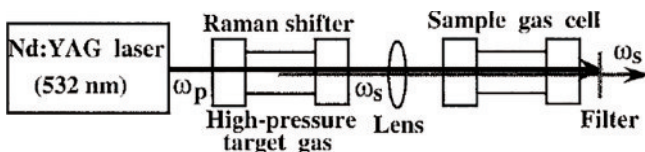


图 3 无可调谐激光器受激拉曼增益光谱原理示意图^[22]

Fig. 3 Schematic diagram of the SRGS setup without a tunable laser^[22]

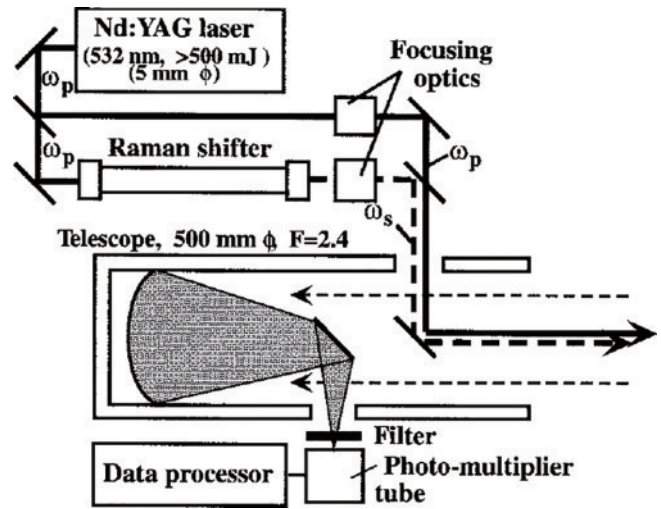


图 4 受激拉曼增益光谱激光雷达系统示意图^[22]

Fig. 4 Schematic diagram of the SRGS lidar system^[22]

使用 Nd:YAG 激光(532 nm、大于 500 mJ、准直至直径 5 mm)作为激光器,泵浦激光 ω_p 一部分进入长度为 1000 mm 充满目标待测气体(例如 CO₂、CH₄ 或 H₂)的拉曼转换器,产生斯托克斯波 ω_s ,以便使差频 $\omega_p - \omega_R$ 自动匹配气体分子的拉曼移位频率 ω_R 。当斯托克斯波 ω_s 与泵浦波 ω_p 一起在大气中传输时,由于目标待测气体受激拉曼增益,斯托克斯波将被放大。相反,当只有斯托克斯光束 ω_s (不带泵浦光束)沿同一路径传输时,不会有任何放大。因此,望远镜在接收点收集的斯托克斯光束的反向散射强度的差异是由于目标待测分子的受激拉曼增益导致的放大差异。最后将检测到的信号作为时间函数进行分析,可以提供分子浓度的范围分辨测量。

2007 年,Ninomiya 等^[23]开发了用于检测 H₂ 的拉曼激光雷达系统,可以在室外光照条件下通过旋转或振动拉曼反向散射检测氢气,检测距离可达 30 m,并且该系统可以通过在望远镜视场内对激光束进行空间扫描,实现氢气分布的可视化二维映射。拉曼激光雷达系统示意图如图 5 所示,Q 开关脉冲 Nd:YAG 激光器(355 nm, 60 mJ, 20 Hz)发射的激光束通过两个光束控制镜的牛顿望远镜(主镜直径 212 mm,副镜直径 68 mm,362 nm 和 416 nm 处镜面反射率大于 90%)轴向传播。激光反向散射(包括瑞利、米氏和拉曼反向散射)通过望远镜收集、准直后经过激光边缘滤光片以抑制杂散激光、瑞利和米氏反向散射,接着由分束器分成两束,并且每条光束通过一个窄带干涉滤光片并被引导到光电倍增管(PMT)。该系统可以测量旋转或振动拉曼反向散射信号以及相邻波长的背景,当获取来自两个通道的信号之间的差异时,这允许消除由宽带荧光产生的任何杂散信号。如果与拉曼反向散射信号相比,这两个波长的荧光差异很小,则减去来自两个通道的信号可以消除杂散信号。

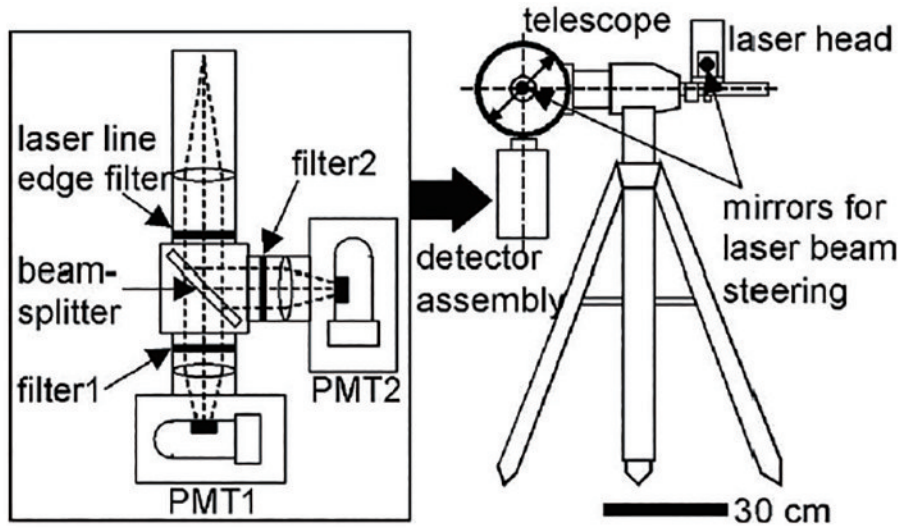


图 5 拉曼激光雷达系统示意图^[23]

Fig. 5 Schematic diagram of the Raman lidar system^[23]

研究人员研究了 H₂ 拉曼反向散射强度与探测距离和 H₂ 释放率的关系, 结果表明: 当探测距离在 10~50 m、信噪比(SNR)大于 5 时, 可以获得 H₂ 气体的拉曼反向散射, 信号强度与探测距离平方的倒数相关, 并且为了获取最佳的信号强度, 望远镜焦距应与气体泄漏探测距离一致; 信号强度对 H₂ 释放速率没有明显的依赖性。研究人员首次实现了激光雷达系统对 H₂ 的可视化二维测绘映射, 在激光器和望远镜轴上的光束

控制镜之间安装激光束扫描仪, 扫描仪附近配置了一台摄像机, 摄像机视场包含望远镜视场, 摄像机记录处于扫描镜不同角度下图像中的激光光斑的位置。激光束依次扫描目标视场区域内的位置(图 6 左图), 获得拉曼反向散射信号, 可见光图像中不同散射信号强度以相应颜色标记, 即可得到彩色显示的 H₂ 拉曼后散射区域(图 6 右图)。

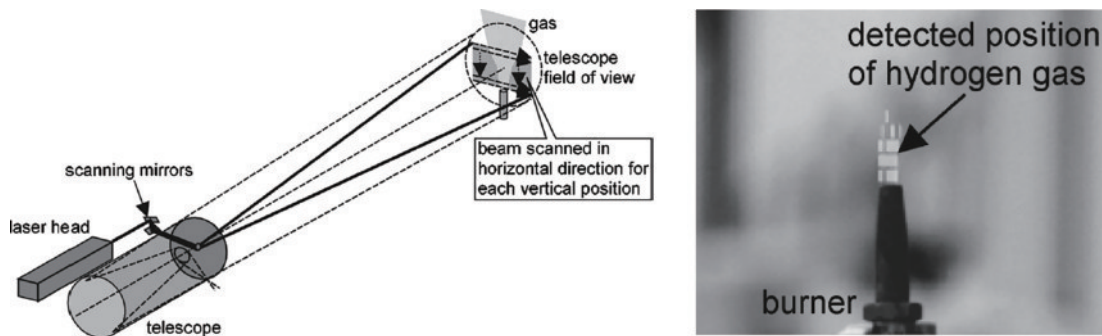


图 6 H₂ 二维可视化激光束扫描示意图(左)和典型 H₂ 二维可视化照片(右)^[23]

Fig. 6 Schematic diagrams of laser beam steering for two-dimensional visualization of H₂ (left) and typical visual two-dimensional photo of H₂ (right)^[23]

2012 年, Asahi 等^[14]开发了用于遥感 H₂ 气体浓度分布的拉曼激光雷达系统, 通过斯托克斯拉曼光谱线进行 H₂ 定性分析, 利用拉曼激光雷达同时测量了泄漏到空气中的 H₂ 气体和大气 N₂ 的拉曼散射信号, 并根据这些信号的比值获得了 H₂ 的体积分数, 实现了探测距离在 13 m 处、体积分数为 0.6%~100% 的 H₂ 遥感检测。拉曼激光雷达系统示意图如图 7 左图所示, Q 开关 Nd:YAG 激光器(354.7 nm、最大输出 6 mJ、脉冲宽度 4 ns、100 Hz)的光束由扩束器扩展, 透射激光束的直径为 12 mm, 光束的发散角为 1 mrad。拉曼散射光由孔径为 170 mm 的非涅耳透镜收集、准直, 并由分束

器分成两束, 每个光束通过一个窄带干涉滤光片并导向 PMT。中心波长为 416.3 nm、半峰全宽(FWHM)为 1.8 nm 的干涉滤光片用于检测 H₂ 拉曼散射光。中心波长为 386.8 nm、FWHM 为 2.0 nm 的干涉滤光片用于检测 N₂ 拉曼散射光。激光边缘过滤器(抑制比小于 10⁻⁶)用于过滤杂散激光。激光脉冲由光电二极管检测, 并用作模/数(A/D)转换器的触发信号。

测量 H₂ 拉曼散射强度与 H₂ 气体浓度的实验方法示意图如图 7 右图所示。由激光雷达方程可以计算得到泄漏到空气中的 H₂ 气体和大气 N₂ 的拉曼散射信号强度, 当 H₂ 气体的浓度低于大气 N₂ 浓度的 80% 时, H₂

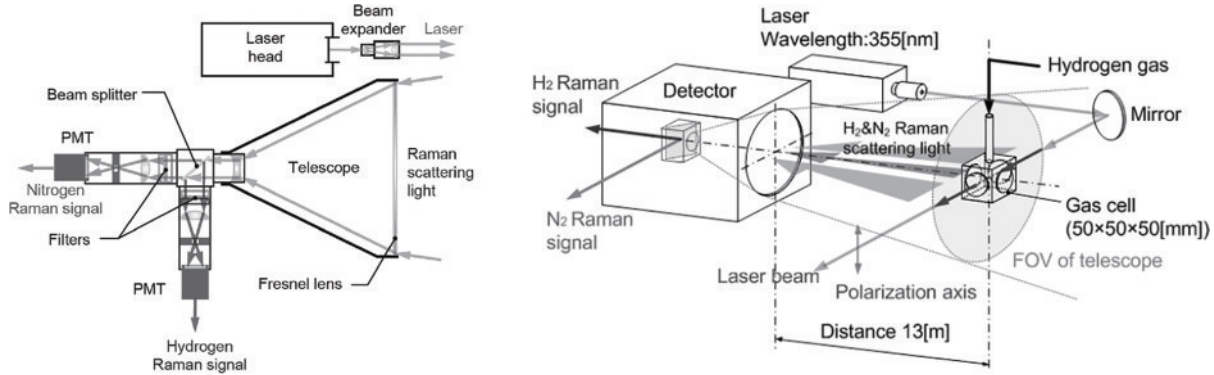


图 7 拉曼激光雷达系统示意图(左)和测量 H₂ 拉曼散射强度与浓度的实验方法示意图(右)^[14]

Fig. 7 Schematic diagrams of the Raman lidar system (left) and the experimental method for measuring Raman scattering intensity and concentration of H₂^[14]

气体浓度的空间分布可以由两者拉曼信号比值来确定。

2015 年, Privalov 等^[24-25]考虑到激光线的有限宽度, 获得了大气中氢分子对光的拉曼背散射的激光雷达方程, 并利用 YAG-Nd 激光器的二次谐波脉冲作为光源的拉曼激光雷达 (532 nm、10 ns、10 mJ、10 kHz) 研究了大气中氢分子对光的拉曼散射的激光雷达信号的特性, 如图 8 所示, 其中, 1 为接收望远镜, 2 和 6 为光电探测器, 3 和 7 为干涉滤光片, 4 为物镜, 5 为反射镜, 8 为旋转棱镜, 9 为激光器。结果表明: 激光辐射的脉冲重复频率需要增加约 2~3 个数量级, 以减少测量时间; 激光线半宽度平均增加一个数量级, 可减少大气中氢分子拉曼散射光功率的绝对测量误差; 优化激光线的宽度和拉曼激光雷达的扩散函数能够获得给定目标 H₂ 气体浓度下最小化的探测时间。

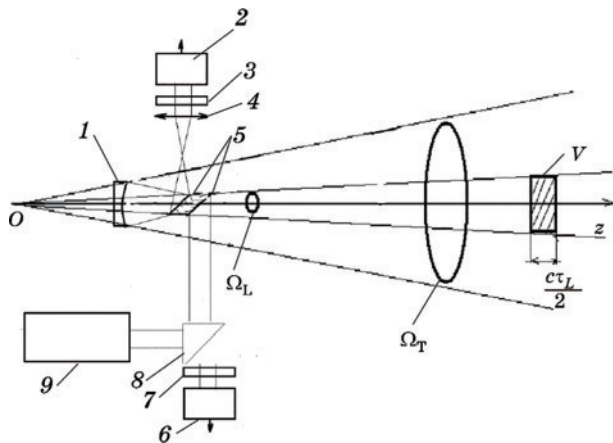


图 8 拉曼激光雷达的光学设置示意图^[25]

Fig. 8 Schematic diagram of Raman lidar^[25]

拉曼激光雷达系统在远距离小区域 (如小于 1 cm²) 检测 H₂ 气体浓度时, 检测精度容易受到空间分辨率限制, 因为空间分辨率取决于激光器的脉冲宽度, 并且在脉冲宽度内测量的 H₂ 气体浓度是分布在该范围内的平均值。针对这一问题, 2018 年, Sugimoto 等^[26]开发了检测小区域 (小于 1 cm²) H₂ 气体浓度的拉

曼激光雷达系统, 如图 9 所示。以 Nd:YLF 脉冲激光器 (349 nm、120 μJ、脉冲宽度 5 ns、1 kHz) 作为激光发射器, 直径为 1 mm 的激光束照射目标测量区域, 产生的拉曼散射光由与透射激光束垂直方向配置的非涅耳透镜 (直径 170 mm、焦距 230 mm) 聚焦。接收系统光学组件 (图 10) 是使用两个凸透镜的开普勒望远镜, 非涅耳透镜和通光孔之间的距离通过非涅耳透镜的焦距和到测量点距离来计算。孔径 1 mm 的通光孔布置在距非涅耳透镜 330 mm 处。拉曼散射光通过位于通光孔后面的凸透镜平行传输, 并通过边缘滤波器 (349 nm 透射率小于 10⁻⁶, 大于等于 360 nm 透射率为 95%) 和带通滤波器 (中心波长 410 nm、FWHM 10 nm) 引入 PMT。研究表明, 拉曼激光雷达能够实现距离检测点 750 mm 处检测点的 H₂ 气体拉曼散射光, 并且拉曼散射信号强度与高于 100 ppm 的 H₂ 气体浓度表现出良好的线性相关性。

2018 年, Shiina^[15]开发了基于二极管泵浦固态 (DPSS) 激光的小型拉曼激光雷达系统 (图 11 左图), 尺寸为 58 cm × 36 cm × 23 cm (图 11 右图), 系统使用 DPSS YLF 激光器 (349 nm、120 μJ,) 作为激光发射器, 激光束被扩展至 10 mm, 接收器望远镜直径为 50 mm, 视场为 2 mrad。H₂ 气体拉曼散射回波通过分光器 (1) 避免回波返回至激光光源, 根据 H₂ (408 nm) 和大气 N₂ (380 nm) 拉曼检测波长, 分光器 (2) 对拉曼散射回波进行分离, 通过 PMT 检测 H₂ 气体和 N₂ 气体拉曼信号, 并通过 N₂ 气体信号定量分析 H₂ 气体浓度。DPSS 小型拉曼激光雷达能够实现 0~50 m 探测距离范围内, 体积分数 1% 的 H₂ 检测限、30 s 的累积时间。

此外, 研究人员针对上述小型拉曼激光雷达系统在危险气体环境下存在激光束聚焦点能量高引发气体点燃风险的问题, 开发了基于发光二极管 (LED) 的低光功率小型拉曼激光雷达 (如图 12 所示), 并通过数值分析和实验验证确定了拉曼散射回波检测最低激光功率为 1 W。LED 小型激光雷达光源采用光功率为 1 W 的 LED 灯模块 (365 nm、脉冲功率 750 mW、500 kHz),

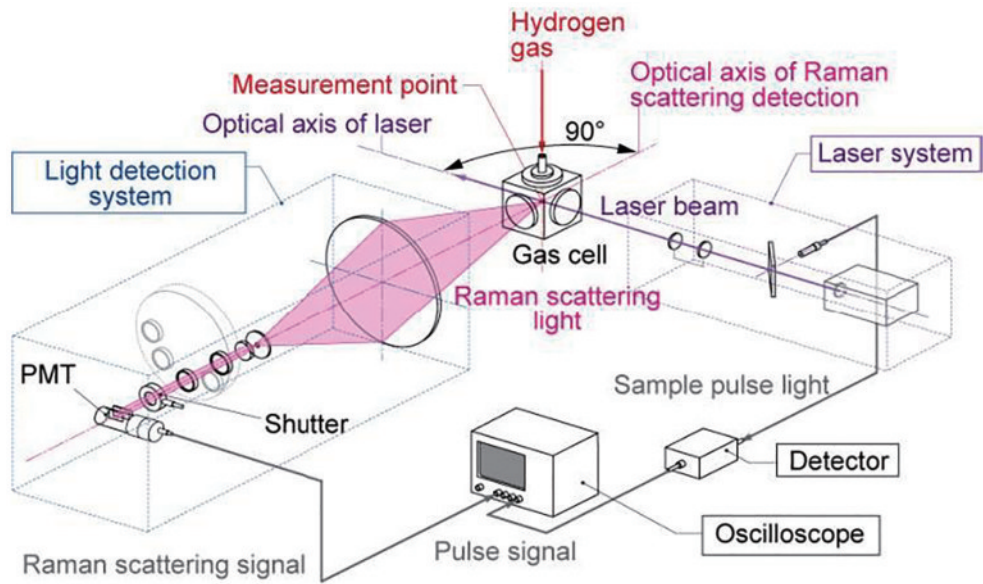


图 9 小区域 H₂ 气体浓度检测拉曼激光雷达系统示意图^[26]

Fig. 9 Schematic diagram of the concentration measurement of H₂ gas in small area^[26]

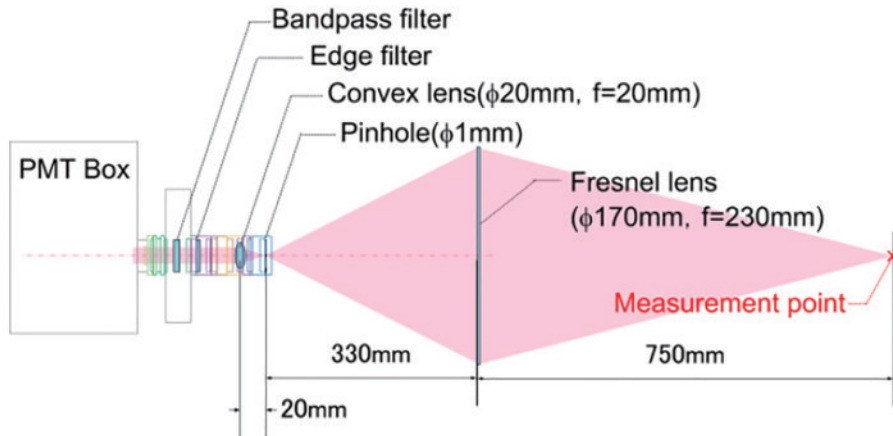


图 10 接收器光学组件布置示意图^[26]

Fig. 10 Layout diagram of receiver optical components^[26]

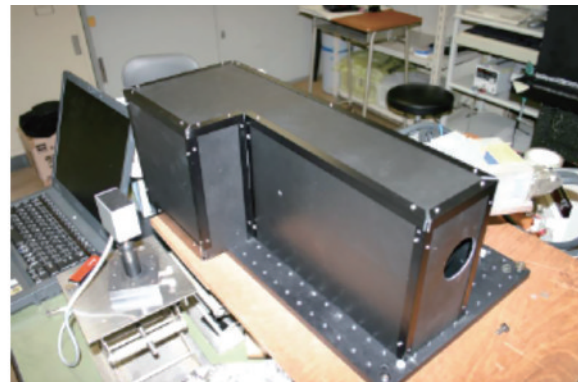
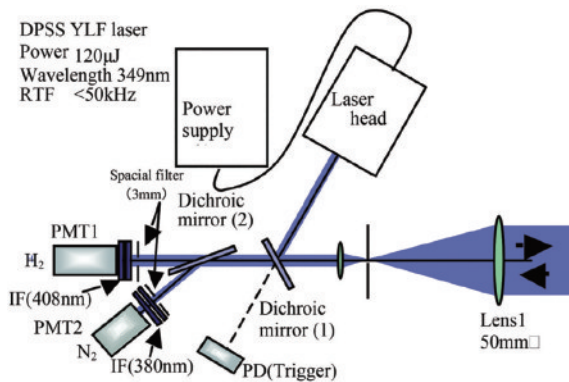


图 11 DPSS 小型拉曼激光雷达示意图(左)和装置外观照片(右)^[15]

Fig. 11 Schematic diagrams of DPSS small Raman lidar (left) and device appearance photo (right)^[15]

LED 光束难以准直,透射后不会聚焦,在安全方面具有一定优势。系统结构与基于 DPSS 小型拉曼激光雷达类似,激光光束扩束至 50 mm,散度约为 10 mrad。

接收望远镜为卡塞格伦型(直径 127 mm、视场 3 mrad),在 PMT 前面设置了滤光轮的干涉滤光片(波宽 10 nm、与 LED 光谱宽度一致),增加了水蒸气

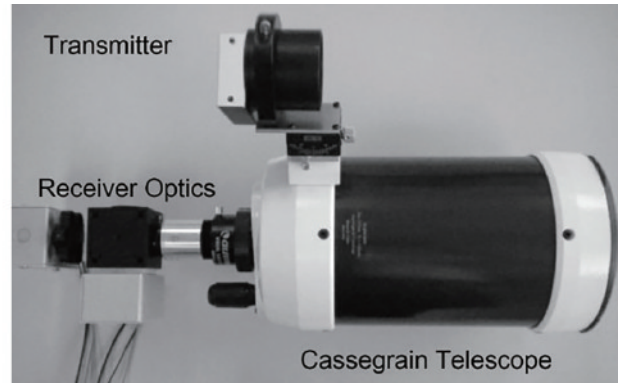
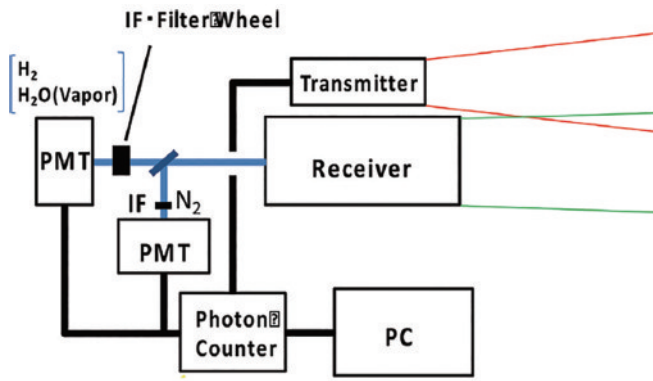


图 12 LED 小型拉曼激光雷达系统示意图(左)和激光雷达装置图(右)^[15]

Fig. 12 Schematic diagram of LED small Raman lidar system (left) and lidar device diagram (right)^[15]

滤波窗口。LED 小型拉曼激光雷达能够实现 0~20 m 探测距离范围内,体积分数 1% 的 H₂ 检测限、3.5 min 的累积时间。

2017 年,Choi 等^[27]开发出用于远程探测和测量 H₂ 气体的 off-axis 拉曼激光雷达系统(如图 13 所示),在白天的室外条件下,该系统在 20 m 的距离处 H₂ 体积分数

检测限为 0.67%。对于 off-axis 方式的光学接收器,只有在特定位置(距离),激光发射光轴和光学接收器的接收光轴才会相互交叉,只能测量交叉点产生的拉曼散射信号。off-axis 光学接收器在数公里的远距离使用没有问题,但在数米至数十米的近距离使用时,激光发射光轴和光学接收器接收光轴的交汇区域会变窄。

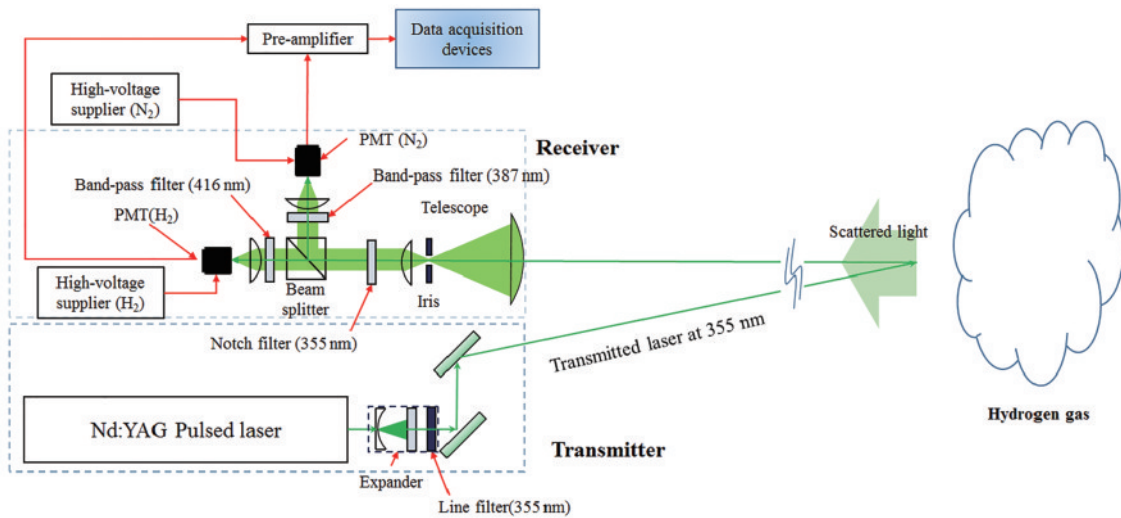


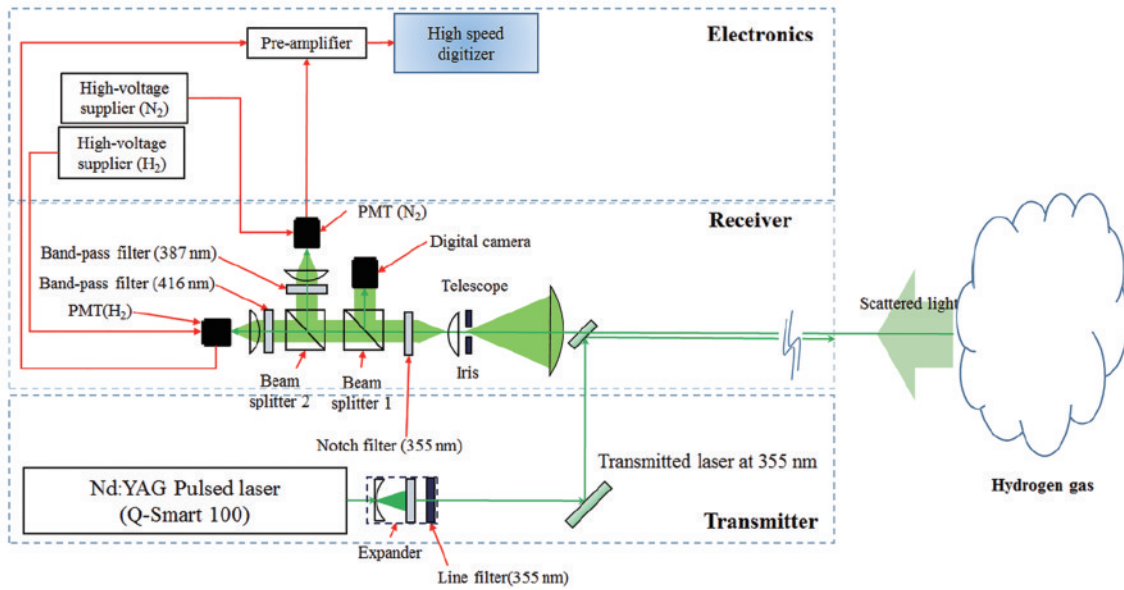
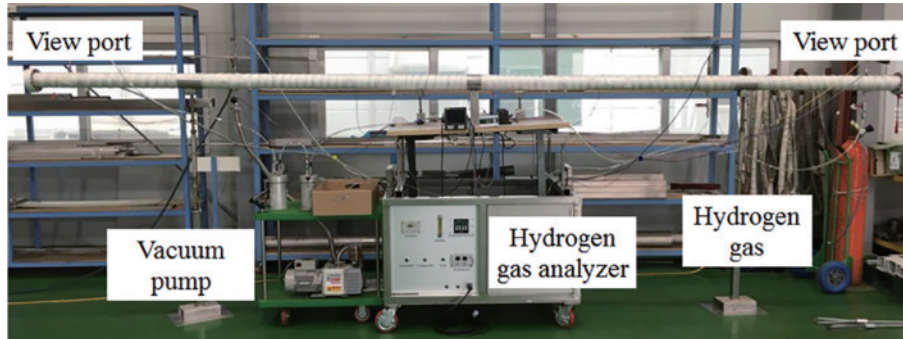
图 13 off-axis 拉曼激光雷达系统示意图^[27]

Fig. 13 Schematic diagram of the off-axis Raman lidar system^[27]

2019 年,Choi 等^[28]开发出用于远距离检测 H₂ 气体体积分数的同轴拉曼激光雷达系统,系统示意图如图 14 所示,主要包含发射器、光学接收器和电子元件组成。发射器包括 Nd:YAG 脉冲激光器(355 nm 三次谐波,30 mJ、脉冲宽度(6±2) ns、20 Hz)和扩束器。光学接收器用于检测由目标气体产生的拉曼信号,由接收望远镜(直径 75 mm)、分束器[分束器①:二向色、波长(365±3.0) nm、透射带(370~525 nm)>95%,T 平均值)、反射带(255~360 nm)>98%,R 平均值);分束器②:二向色、波长(409±3.0) nm、透射带(415~850 nm)>95%,T 平均值)、反射带(325~403 nm)>98%,R 平均值)、窄带通滤波器(窄带通滤波器①:416 nm 用于 H₂ 拉曼信号;窄带通滤波器②:387 nm 用于 N₂ 拉曼信

号)、数码相机和 PMT 组成。窄带通滤波器用于阻挡激光、环境光和激光诱导荧光等噪声信号;分束器用于分离拉曼信号;PMT 用于放大目标气体的微弱拉曼信号。电子元件由高压电源控制单元和高速数字转换器组成,分别用于控制 PMT 的放大值和将模拟拉曼信号转换为数字信号。

此外,Choi 等^[29]提出了一种利用拉曼激光雷达系统测量氢气体积分数的方法,用 H₂ 气体和 N₂ 气体的拉曼信号的比值推导得到以 H₂ 气体体积分数单位表示的 H₂ 气体浓度的方程,搭建了长 6 m 用于保持一定体积分数(0%~30%)的 H₂ 气室(如图 15 所示),分别在探测距离 10、20、30 m 条件下对同轴拉曼激光雷达系统的性能和方程的准确性进行了验证。实验结果表

图 14 同轴两通道拉曼激光雷达系统示意图^[28]Fig. 14 Schematic diagram of the conventional 2-channel Raman lidar system^[28]图 15 长 6 m 气室照片^[28]Fig. 15 Photograph of the 6 m gas chamber^[28]

明,在 10~30 m 探测距离范围内,方程测定的 H_2 气体体积分数与距离的线性相关性较高,决定系数 R^2 为 0.9997,平均误差率为 0.54%,在 30 m 处的标准偏差为 2.42%,该系统在 50 m 的距离处探测 H_2 气体体积分数检测限为 0.66%。

因为 H_2 气体拉曼散射信号非常微弱,其信号包括背景噪声信号,如泵浦激光、激光诱导荧光信号和环境光等,导致 H_2 气体、 N_2 气体两通道拉曼激光雷达的信噪比低。针对这一问题,Choi 等^[30]提出了使用超窄带通滤波器(FWHM 0.5 nm)或陷波滤波器来降低泵浦激光和激光诱导荧光信号影响的拉曼激光雷达系统方案,通过消除背景噪声信号来提高拉曼激光雷达系统测量氢气的精度,图 16 展示了用于测量氢拉曼信号和背景噪声信号的三通道拉曼激光雷达系统示意图。分束器(BS)涂层平面与入射光成 45° 角,并根据涂层表面透射或反射入射光,接收器通过使用分束器测量氮气和氢气的拉曼散射信号而具有两条光路。在整个分束器中,拉曼散射光照亮了超窄带通滤波器。特定波长光束通过超窄带通滤波器,其他波段的光被光学超

带通滤波器反射,并被分束器照明。因此,分束器反射路径的另一侧可以通过背景噪声信号(如泵浦激光、激光诱导荧光信号和环境光)测量。

2019 年,Segawa 等^[31]开发出用于 3~4 m 处观察狭小空间内 H_2 扩散行为的拉曼激光传感器,如图 17 所示。激光束通过两个全反射镜反射后照射到目标空间 H_2 气体,菲涅耳透镜(直径 15 cm)聚焦产生的拉曼散射经双凸透镜平行通过边缘滤光器和干涉滤光器,被 PMT 转换成电信号,电信号被发送到模数转换器,信号强度显示在计算机上。随后研究人员通过增大菲涅耳透镜直径、使用较小滤波器缩短散射光接收装置长度的措施增强 H_2 气体信号强度,实现了更远的探测距离(7.5 m)。

2019 年,Wen 等^[32]开发出四镜多通道单元增强拉曼系统,用于氢同位素检测,检测限可以在 2 s 内达到 132 ppm。增强拉曼系统如图 18 所示,使用 Laser Quantum OPUS660 红外激光器(660 nm、1.5 W)并由水冷器维持基板温度在 $25^\circ C$,激光光束经过带通滤波器(F)后由两个反射镜(M1、M2)反射后通过隔离器并

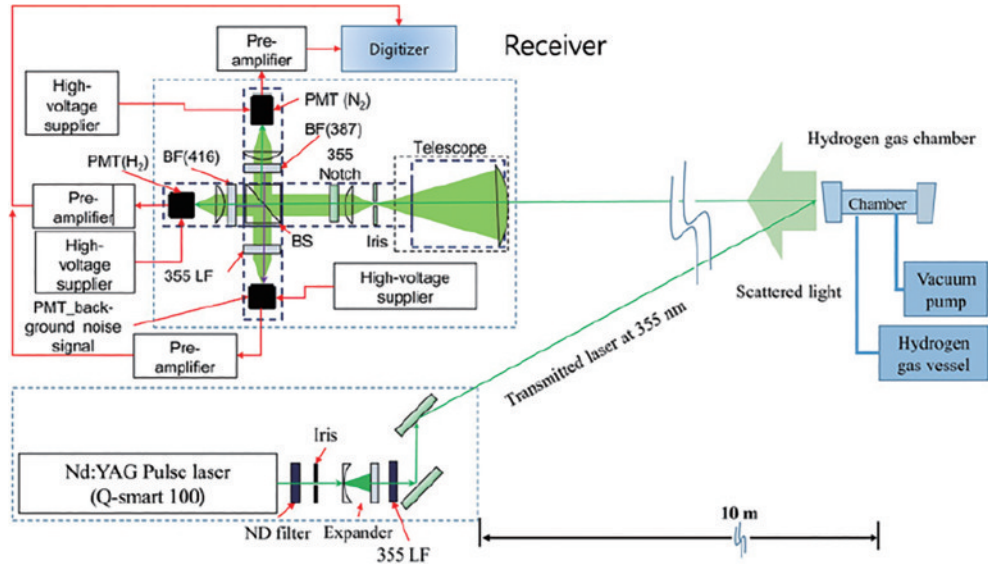


图 16 三通道拉曼激光雷达系统示意图^[30]

Fig. 16 Schematic diagram of the three-channel Raman lidar system^[30]

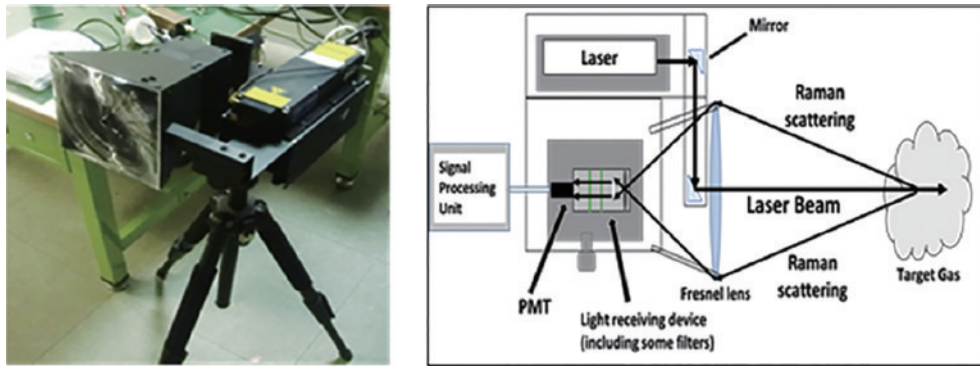


图 17 拉曼传感器和测量系统示意图^[31]

Fig. 17 Raman sensor and schematic diagram of the measurement system^[31]

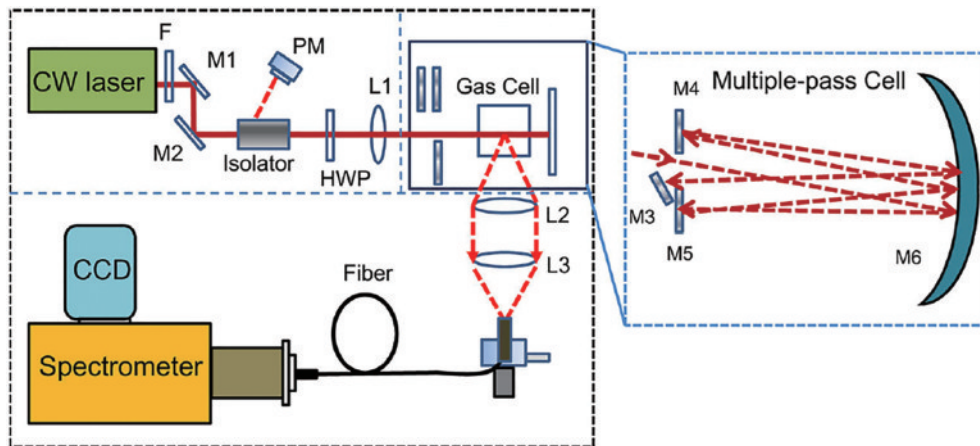


图 18 四镜多通道单元增强拉曼系统^[32]

Fig. 18 Schematic diagram of the four-mirror multiple pass enhanced Raman system^[32]

由半波片(HWP)调整激光束偏振态以增强拉曼信号,接着光束由透镜(L1焦距 400 mm)聚焦到 H₂ 气体池中,然后在多通道单元中多次反射,以增加信号强度。多通道气体池由一个凹面镜(M6)和三个高反射镜

(M3、M4 和 M5)组成。从多通道单元输出的散射拉曼信号由两个与激发光束成直角的消色差透镜(L2、L3 焦距 80 mm)收集,并成像到由 56 根多模光纤(数值孔径 0.22、纤芯直径 100 μm)组成的光纤束上,拉曼滤波

器单元连接到摄谱仪。

以往的研究检测目标氢气波长比入射激光更长的斯托克斯光,当目标气体附近存在管道、墙壁等物体,物体产生激光诱导的强荧光会干扰 H_2 气体斯托克斯拉曼散射光的检测。比入射激光波长短的反斯托克斯光不受激光诱导荧光的影响。2021 年, Sugimoto 等^[33] 以在常温常压下检测目标区域 H_2 气体反斯托克斯光为目的,利用相干反斯托克斯拉曼光谱(CARS)开发了一种新型光源光学系统,用于 H_2 气体泄漏检测。基

于 CARS 新型 H_2 气体探测器光源结构示意图如图 19 所示,使用 Q 开关 Nd:YAG 激光器(355 nm、30 mJ、5.5 ns、20 Hz)作为激光光源,光束经过半波片[WP(A)]产生 P 偏振光和 S 偏振光。激光束被偏振分束器立方体[PBS(B)]分成两条光路:P 偏振光光路上设置长度 400 mm 充满 H_2 (0.5~0.7 MPa)的拉曼转换器用入射激光的一部分照射以获得其斯托克斯光,合适的拉曼转换器光路长度和气体压力,可以获得稳定的斯托克斯光;S 偏振光作为泵浦激光光束照射旁路。

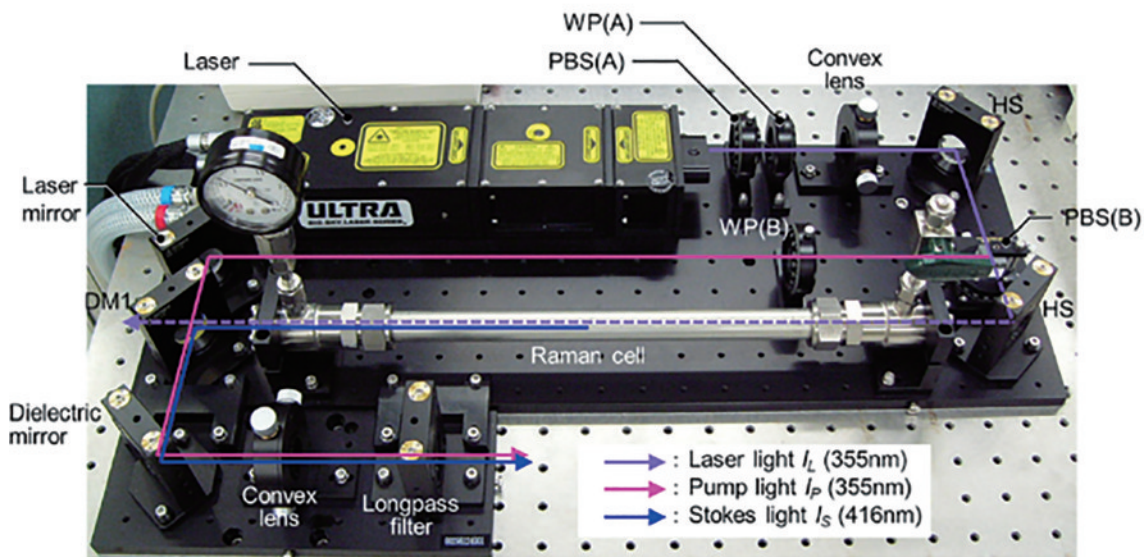
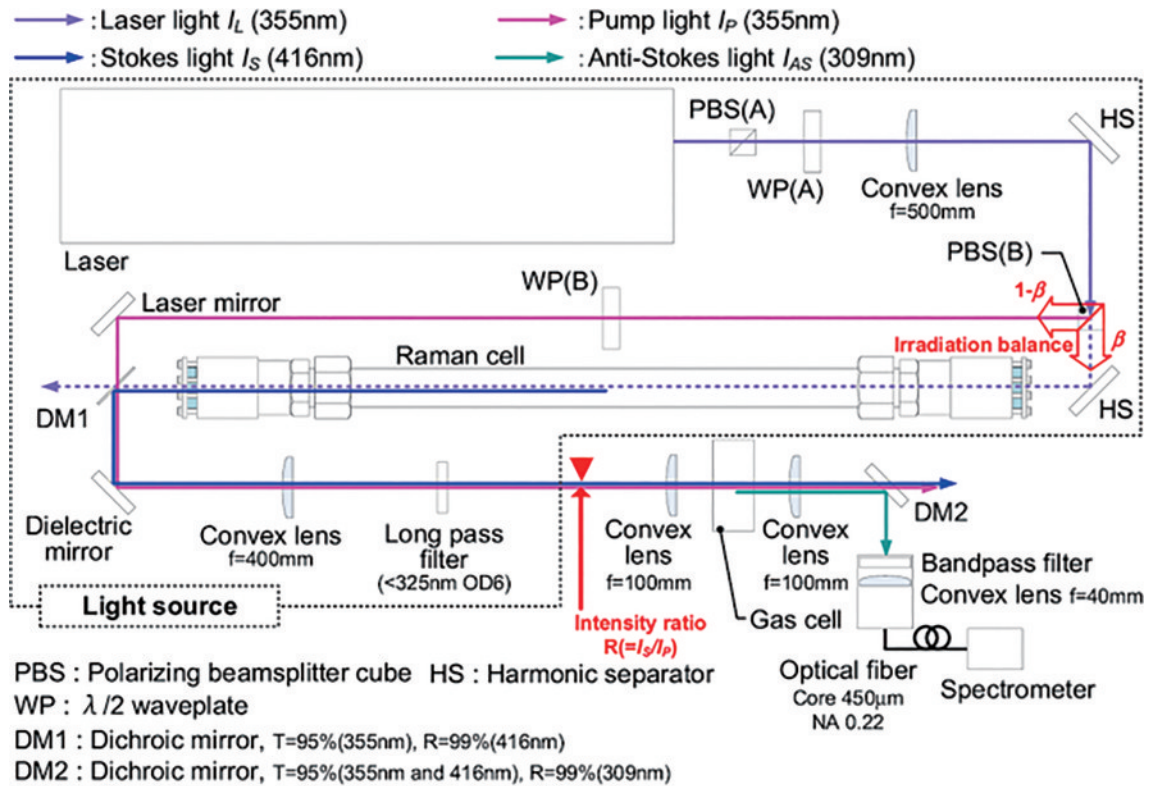


图 19 基于 CARS 新型 H_2 气体拉曼激光光源结构示意图(上)及装置实物照片(下)^[33]

Fig. 19 Schematic diagram of the light source of the new hydrogen gas detector based on CARS (up) and appearance of the light source (down)^[33]

PBS(B)前设置WP(A),通过旋转WP(A)调节两条光路上入射光束的强度。为了匹配泵浦光和来自拉曼转换器的斯托克斯光的偏振方向,在旁路设置WP(B)将S偏振光改变为P偏振光。泵浦光和斯托克斯光通过分色镜(DM1)组合,过滤拉曼转换器产生的干扰检测高阶斯托克斯光,反斯托克斯光通过边缘滤波器消除。将泵浦光和斯托克斯光同时照射到填充有待测H₂气体的气池。用于测量的反斯托克斯光通过设置在气室后面的分色镜(DM2)与它们分离,并且其光强度通过光谱仪光学器件测量。在光谱仪光学系统中,安装了作为聚光透镜的凸透镜和用于抑制干扰光的带通滤波器。结果表明,当泵浦光强度和斯托克斯光强度的比值R在0.140~0.173范围内时,H₂气体反斯托克斯光的产生效率得到优化,在优化条件下使用开发的CARS拉曼激光系统可以实现200 ppm ± 15%浓度H₂气体的检测。此外研究人员利用该CARS拉曼激光系统成功地测量了释放到大气中的低浓度H₂气体。

3.2 光子计数器拉曼激光雷达系统

拉曼激光雷达系统的激光功率、频率和光学接收器直径对遥测H₂气体的影响较大。增大激光输出能量,激光振荡器就会增大,为了稳定输出,需要单独的冷却装置,难以做到系统整机小型化。为便于系统小型化而降低激光输出能量时,拉曼信号信噪比就会降低,导致测量精度减小,利用光子计数器可以提高因激光功率下降而降低的信噪比。不同于传统高功率脉冲激光器拉曼激光雷达系统中电子电路部分使用高速数字转换器将模拟信号转换为数字信号,光子计数拉曼激光雷达系统使用光子计数器而不是高速数字转换器,使用光子计数器能够消除诸如激光诱导光、环境光和荧光等噪声。光子计数器的原理如图20所示,通过光子鉴别器计算光子信号数量的装置,通过累积脉冲激光产生的光子数量,可以恢复产生的信号波形^[34]。

2016年,Liméry等^[35-36]开发了一种对H₂、H₂O和N₂敏感的三通道拉曼激光雷达系统,如图21所示,该

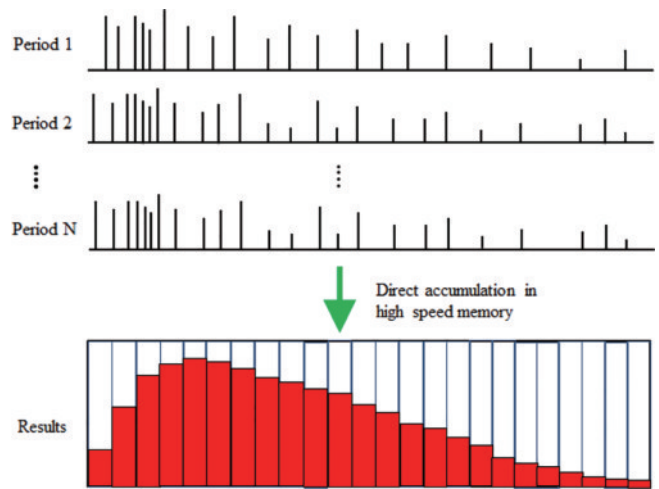


图 20 光子计数器的原理^[34]

Fig. 20 Principle of the photon counting process^[34]

系统使用硅光电倍增管(SiPM)探测器,可以实现与预期信号电压兼容的计数率检测的光子。与传统用于大气激光雷达的PMT技术相比,SiPM无需高电压,不会产生暗态效应或强光损伤,光子检测率高(光子计数)、速度快(500 MHz计数率),具有更简单、鲁棒性更好的特点。三通道拉曼激光雷达系统使用Quantel-Ultra 100 Nd:YAG脉冲激光器(355 nm、30 mJ、20 Hz、5.5 ns)作为激光源,激光光束经过扩束器扩展以减少发散,并在目标距离处聚焦。牛顿望远镜(直径114 mm、焦距500 mm或者直径152 mm、焦距609 mm)接收到的振动斯托克斯-拉曼散射信号被耦合到多模光纤并被引向专用于频谱分析的子系统。光谱分析仪中通过设置在每个检测器前面的长通滤光片(F)来消除355 nm处瑞利-米散射,二向色镜(DM)用于不同波长光束的通道分离。研究人员通过搭建的实验装置在85 m处沿长5 m、直径10 cm的开放式气室进行了H₂和水蒸气的检测,并通过实验数据进行外推模拟,预测了激光雷达系统远距离探测性能。结果表明,当条件和激光雷达系统在积分时间内保持足够稳

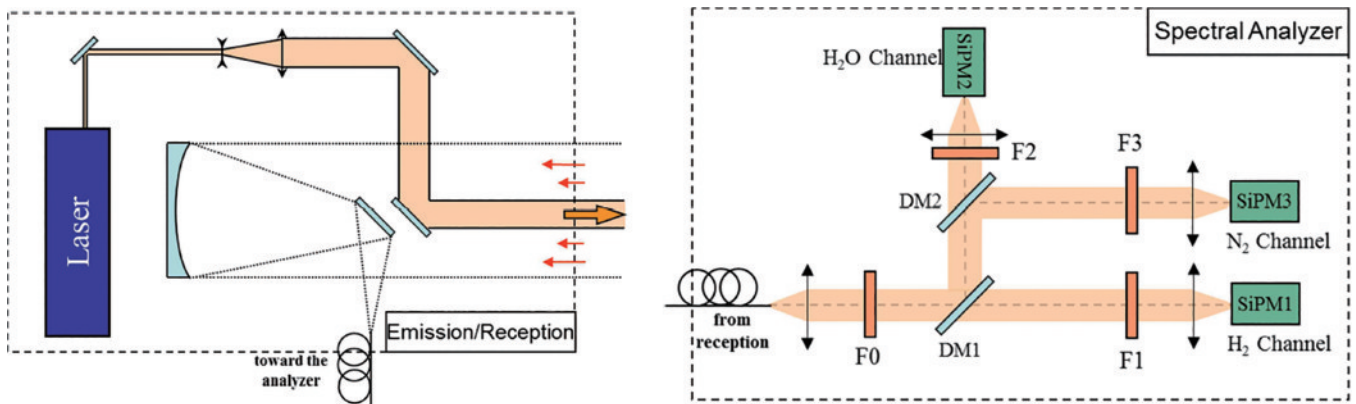


图 21 三通道拉曼激光雷达系统激光发射与信号接收单元(左)和光谱分析仪结构(右)示意图^[35]

Fig. 21 Schematic diagram of the emission/reception part (left) and the spectral analyzer (right) of three-channel Raman lidar system^[35]

定时, 11 min 累计时间内, 干燥空气中探测距离 500 m 处的 H₂ 体积分数检测限为 0.05%。

2019 年, Choi 等^[34] 开发出基于 μJ 级别能量输出的半导体激光的小型化光子计数拉曼激光雷达系统, 如图 22 所示, 使用二极管泵浦激光器 (CryLas FTSS 355-Q2, 355 nm 处功率为 3 μJ、1 ns、10 kHz), 接收望远镜的直径为 75 mm。实验结果表明, 光子计数拉曼激光雷达系统在探测距离为 10 m 处 H₂ 体积分数检测限为 0.65%。

2021 年, Choi 等^[37] 开发出新一代小型化光子计数 (PC) 拉曼激光雷达系统, 示意图如图 23 所示, 实物照片如图 24 所示。激光发射器部分由脉冲激光器 (二极管泵浦激光器 CryLas FTSS 355-Q2, 355 nm 处功率 3 μJ、1 ns、10 kHz) 和扩束器组成; 光学接收器由光学透镜 (直径 75 mm)、分束器、带通滤波器和 PMT 组成; 电子部件采用光子计数器来抑制激光诱导光、环境光和荧光等噪声。PC 拉曼激光雷达系统能够在 30 m 距离处检测到体积分数为 0.66%~100% 的 H₂。将该实

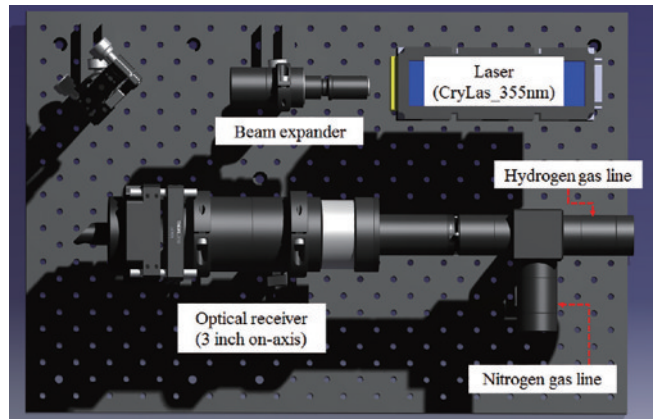


图 22 光子计数拉曼激光雷达系统 3D 设计图^[34]
Fig. 22 3D design lay-out of developed photon counting Raman lidar system^[34]

验结果与上述探测距离为 10 m 的实验^[34] 进行比较可知, 随着探测距离的增加, 测量误差的平均值从 0.4 略微增加到 0.54, 标准差的平均值从 0.94 增加到 2.42, 但与典型拉曼激光雷达系统的性能相当。

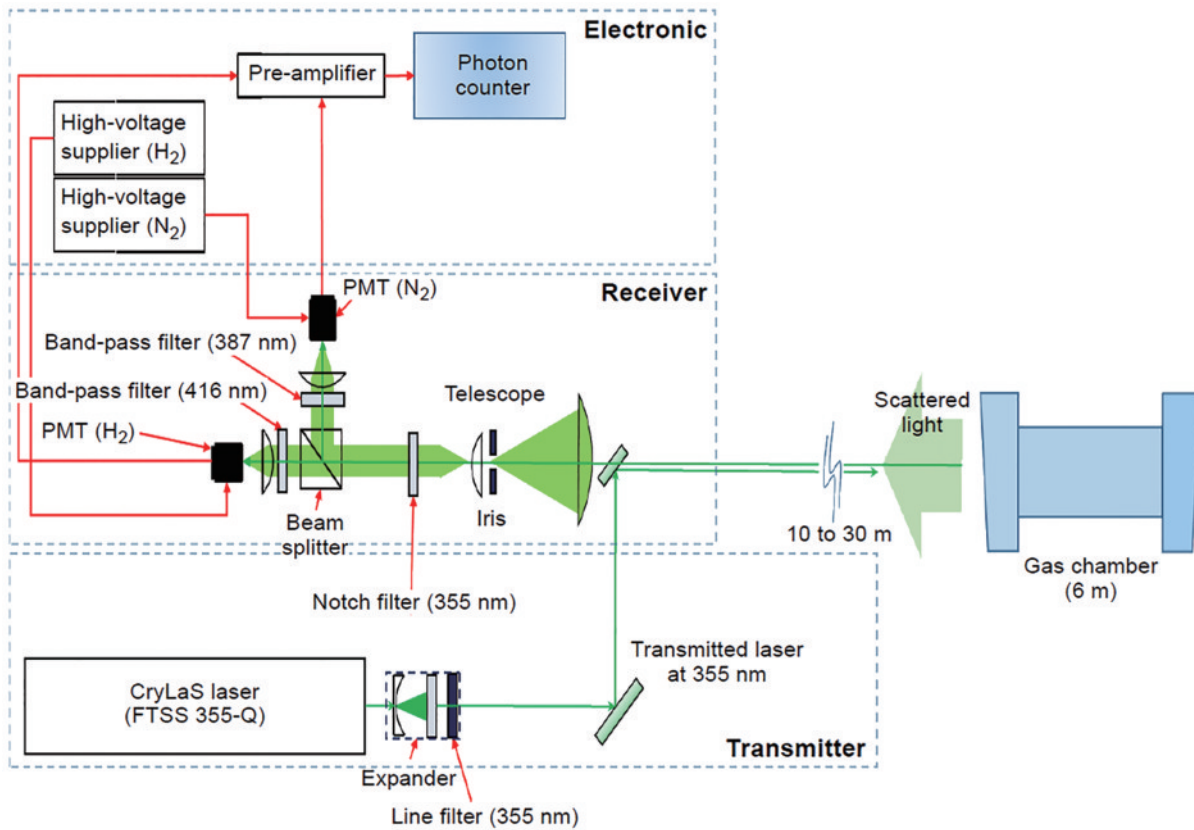


图 23 on-axis PC 拉曼激光雷达系统示意图^[37]
Fig. 23 Schematic diagram of the on-axis PC Raman lidar system^[37]

3.3 现有典型拉曼雷达系统参数及性能对比

综上所述, Privalov、Ninomiya、Liméry、韩国原子能研究院等主要研究人员或研究机构开展了拉曼激光雷达系统检测 H₂ 气体的相关工作。根据上述分析可知, 用于检测 H₂ 气体的拉曼激光雷达系统中, 激

光发射系统照射到 H₂ 气体产生拉曼散射现象, 其性能取决于激光输出功率、重复率以及测量拉曼散射信号的光学接收装置直径。现有典型拉曼雷达系统参数及性能对比如表 3 所示。

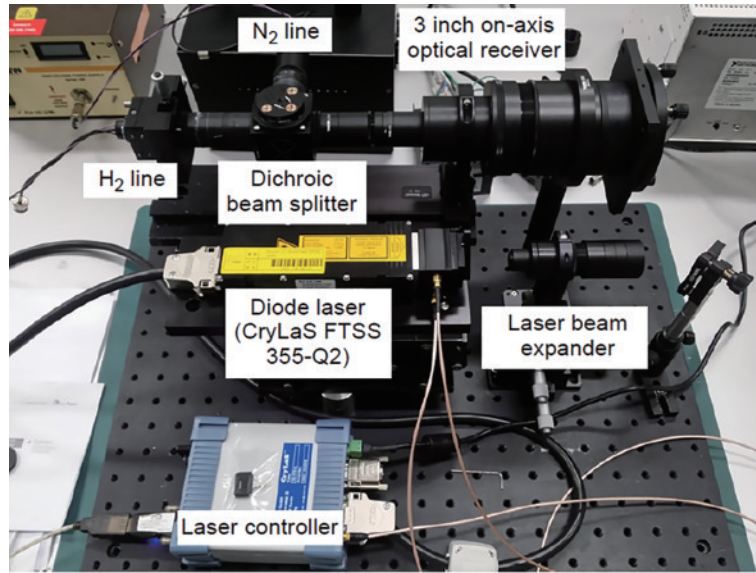


图 24 PC 拉曼激光雷达系统照片^[37]

Fig. 24 Photograph of on-axis PC Raman lidar system^[37]

表 3 现有典型拉曼雷达系统参数及性能(扩展自[37])

Table 3 Parameters and performance of previously typical Raman lidar systems (extend from [37])

Lite	LOD / %	Detection distance / m	Laser max energy output / mJ	Wave-length / nm	Repe-tition rate / Hz	Telescope diameter / mm	Band-pass filter centre / nm	Band-pass filter FWHM / nm
[17]	0.6	2	100	532	50	400	648	5
[23]	0.6	13	6	355	100	170	416.3	1.8
[14]								
[26]	0.01	0.75	0.12	349	1000	170	410	10
[15]	1	0-50	0.12	349	<50000	50		
	1	0-20		365		127		
[27]	0.67	20						
[29]	0.66	50	30	355	20	75	416	0.5
[30]	0.67	30	30	355	20	75	416	0.3
[34]	0.65	10	0.003	355	10000	75	416	
[36]	2	85	30	355	20	152	416	15
[37]	0.66-100	30	0.003	355	10000	75	416	
[38]	0.76	50	250	355	10	100	375, 385, 395	

4 结论与展望

随着氢能利用场景多元化的高速发展,结合现阶段构建非接触、及时准确、远距离大范围的H₂气体泄漏监测预警系统的实际需求,本综述首先介绍了气体拉曼散射基本原理,梳理归纳了国内外H₂气体泄漏拉曼激光雷达遥测技术与系统研究进展,并提出以下两点展望:

1) H₂气体拉曼反向散射截面小,拉曼散射信号弱,特别是自然光条件下背景干扰较强,加大了远距离遥测的难度。因此,需要通过有效的拉曼增强技术和智能化的光谱识别与处理技术来提高检测灵敏度和精度。

2) 实现H₂气体泄漏拉曼激光雷达从点型或者线型检测到面型检测转变,并叠加可见光图像,形成可视化检测预警系统,能够极大地提高H₂气体泄漏监测覆盖面积、时效性和应急处置能力。

参 考 文 献

- [1] International Energy Agency (IEA). Global hydrogen review 2022[EB/OL]. [2022-11-09]. <https://www.iea.org/reports/global-hydrogen-review-2022>.
- [2] 母坤, 童杏林, 胡畔, 等. 氢气传感器的技术现状及发展趋势[J]. 激光杂志, 2016, 37(5): 1-5.
Mu K, Tong X L, Hu P, et al. Technology status and development trend of hydrogen sensor[J]. Laser Journal, 2016, 37(5): 1-5.

- [3] Hübert T, Boon-Brett L, Black G, et al. Hydrogen sensors: a review[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2011, 157(2): 329-352.
- [4] 赵鹏, 谢平. 电阻型氢气传感器专利技术综述[J]. *中国科技信息*, 2020(19): 28-29.
Zhao P, Xie P. Summary of patent technology of resistance hydrogen sensor[J]. *China Science and Technology Information*, 2020(19): 28-29.
- [5] 李庆润. 氢气传感器研究进展[J]. *安全、健康和环境*, 2021, 21(9): 14-19.
Li Q R. Research progress of hydrogen sensor[J]. *Safety Health & Environment*, 2021, 21(9): 14-19.
- [6] 李慧, 杨远洪. 光纤氢气传感技术(特邀)[J]. *红外与激光工程*, 2022, 51(1): 20211114.
Li H, Yang Y H. Optical fiber hydrogen sensing technology(Invited)[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2022, 51(1): 20211114.
- [7] 张艳, 杨泽后, 李晓峰, 等. 生物/化学战剂激光遥测技术新进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2014, 51(3): 030002.
Zhang Y, Yang Z H, Li X F, et al. Development of lidar detection technology for chemical/biological agents[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2014, 51(3): 030002.
- [8] 赵家炜, 马建乐, 郝锐, 等. 远程增强拉曼光谱技术及其应用[J]. *光散射学报*, 2021, 33(2): 112-128.
Zhao J W, Ma J L, Hao R, et al. Remote enhanced Raman spectroscopy technology and its application[J]. *The Journal of Light Scattering*, 2021, 33(2): 112-128.
- [9] 郭一新, 金伟其, 何玉青, 等. 自然环境下拉曼光谱遥测技术及其应用进展[J]. *红外技术*, 2022, 44(6): 543-559.
Guo Y X, Jin W Q, He Y Q, et al. Remote Raman spectroscopy in natural environments[J]. *Infrared Technology*, 2022, 44(6): 543-559.
- [10] 狄慧鸽, 华灯鑫. 云探测中的激光雷达技术研究进展[J]. *光学学报*, 2022, 42(6): 0600002.
Di H G, Hua D X. Research progress of lidar in cloud detection[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(6): 0600002.
- [11] 龚威, 史硕, 陈博文, 等. 机载高光谱激光雷达成像技术发展与应用[J]. *光学学报*, 2022, 42(12): 1200002.
Gong W, Shi S, Chen B W, et al. Development and application of airborne hyperspectral LiDAR imaging technology[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(12): 1200002.
- [12] 张汉熠, 赵新宇, 张益成, 等. 单光子激光雷达研究进展[J]. *中国激光*, 2022, 49(19): 1910003.
Zhang H Y, Zhao X Y, Zhang Y C, et al. Review of advances in single-photon LiDAR[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(19): 1910003.
- [13] 宋召奇, 朱精果, 解天鹏, 等. 安防激光雷达研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(1): 0100002.
Song Z Q, Zhu J G, Xie T P, et al. Research progress on security LiDAR[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(1): 0100002.
- [14] Asahi I, Sugimoto S, Ninomiya H, et al. Remote sensing of hydrogen gas concentration distribution by Raman lidar[J]. *Proceedings of SPIE*, 2012, 8526: 85260X.
- [15] Shiina T. Hydrogen gas detection by mini-Raman lidar [M]//*Ionizing radiation effects and applications*. London: InTech, 2018: 41-60.
- [16] Kiefer J, Seeger T, Steuer S, et al. Design and characterization of a Raman-scattering-based sensor system for temporally resolved gas analysis and its application in a gas turbine power plant[J]. *Measurement Science and Technology*, 2008, 19(8): 085408.
- [17] Verem'ev R N, Privalov V E, Shemanin V G. Optimization of a semiconductor lidar for detecting atmospheric molecular iodine and hydrogen[J]. *Technical Physics*, 2000, 45(5): 636-640.
- [18] Measures R M. *Laser remote sensing: fundamentals and applications*[M]. New York: Wiley, 1984.
- [19] Privalov V E, Shemanin V G. About minimal pulse energy at the YAG-Nd harmonics laser sensing[J]. *Optics and Spectroscopy*, 1997, 82(5): 873-875.
- [20] Laktushkin G V, Privalov V E, Shemanin V G. Parameters for the inclined-path sensing of molecular hydrogen in the atmosphere by lidar with a YAG: Nd laser[J]. *Technical Physics*, 1998, 43(1): 16-18.
- [21] Laktushkin G V, Privalov V E, Shemanin V G. Gas laser lidar system optimization for hydrogen molecule monitoring in the atmosphere[J]. *Proceedings of SPIE*, 1998, 3403: 276-284.
- [22] Vasa N J, Hatada A, Nakazono S, et al. Feasibility of nonlinear Raman lidar based on stimulated Raman gain spectroscopy without a tunable laser[J]. *Applied Optics*, 2002, 41(12): 2328-2332.
- [23] Ninomiya H, Yaeshima S, Ichikawa K, et al. Raman lidar system for hydrogen gas detection[J]. *Optical Engineering*, 2007, 46(9): 094301.
- [24] Privalov V E, Shemanin V G. Lidar measurement of the power of Raman light scattering by hydrogen molecules [J]. *Measurement Techniques*, 2015, 57(12): 1356-1360.
- [25] Privalov V E, Shemanin V G. Taking the line width of the laser radiation into account in the lidar equation for Raman scattering of light[J]. *Journal of Optical Technology*, 2015, 82(9): 582-586.
- [26] Sugimoto S, Asahi I, Shiina T. Hydrogen gas concentration measurement in small area using Raman lidar measurement technology[J]. *EPJ Web of Conferences*, 2018, 176: 01019.
- [27] Choi I Y, Baik S H, Park N G, et al. Development of a Raman lidar system for remote monitoring of hydrogen gas[J]. *Korean Journal of Optics and Photonics*, 2017, 28(4): 166-171.
- [28] Choi I Y, Baik S H, Cha J H, et al. A hydrogen gas concentration measurement method using the Raman lidar system[J]. *Measurement Science and Technology*, 2019, 30(5): 055201.
- [29] Choi I Y, Baik S H, Lim J Y, et al. Development of on-axis Raman lidar system for remotely measuring hydrogen gas at long distance[J]. *Korean Journal of Optics and Photonics*, 2018, 29(3): 119-125.
- [30] Choi I Y, Baik S H, Park N G, et al. Improvement of

- the measuring accuracy of the Raman lidar for remote detection of the hydrogen gas[J]. *International Journal of Precision Engineering and Manufacturing*, 2018, 19(7): 967-973.
- [31] Segawa Y, Inoue M, Nakamoto A, et al. Research on hydrogen dispersion by Raman measurement[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2019, 44(17): 8981-8987.
- [32] Wen C W, Huang X, Wang W W, et al. Multiple-pass-enhanced Raman spectroscopy for long-term monitoring of hydrogen isotopologues[J]. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2019, 50(10): 1555-1560.
- [33] Sugimoto S, Asahi I, Shiina T. A practical-use hydrogen gas leak detector using CARS[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2021, 46(37): 19693-19703.
- [34] Choi I Y, Baik S H, Cha J H, et al. Study of a method for measuring hydrogen gas concentration using a photon-counting Raman lidar system[J]. *Korean Journal of Optics and Photonics*, 2019, 30: 114-119.
- [35] Liméry A, Cézard N, Bertrand J, et al. A multi-channel Raman Lidar in photon counting mode using SiPM technology[C]//*Imaging and Applied Optics 2016*, July 25-28, 2016, Heidelberg, Germany. Washington, D.C.: Optica Publishing Group, 2016: LTh1G. 4.
- [36] Liméry A, Cézard N, Fleury D, et al. Raman lidar for hydrogen gas concentration monitoring and future radioactive waste management[J]. *Optics Express*, 2017, 25(24): 30636-30641.
- [37] Choi I Y, Baik S H, Choi Y S. Remotely measuring the hydrogen gas by using portable Raman lidar system[J]. *Optica Applicata*, 2021, 51(1): 38-49.
- [38] Ball A J. Investigation of gaseous hydrogen leak detection using Raman scattering and laser-induced breakdown spectroscopy[D]. Florida: University of Florida, 2005.