光学被动成像干涉技术探测深海热液 CH_4

刘青松[1,2],胡炳樑[1],唐远河[3], 于 涛[1],王雪霁[1,2],刘永征[1], 杨 鹏[4], 王浩轩[3]

(1. 中国科学院西安光学精密机械研究所 光谱成像技术重点实验室,陕西 西安 710119;
2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 西安理工大学 理学院, 陕西 西安 710048;
4. 青岛海洋科学与技术国家实验室 海洋观测与探测联合实验室, 山东 青岛 266200)

摘 要: 为了实现对热液甲烷浓度、温度和压强信息的实时、长期探测,提出一种新颖的光学被动成像干涉系统(Optical Passive Imaging Interference System, OPIIS),并建立了该系统的正演模型和反演模型。首先利用 IDL 语言建立了包括深海气体辐射模型、海水传输模型和仪器响应模型的 OPIIS 正演模型,并模拟其正演干涉图。正演干涉图信噪比总体处于 50~70,浓度探测灵敏度为 0.1 mmol/L, 温度灵敏度为 2 K,压强灵敏度为 0.1 MPa。其次采用成像干涉技术结合偏最小二乘法的方法进行 OPIIS 数据的精确、快速反演。利用 25 个建模样本建立了甲烷多因变量 PLS 回归模型,并利用 25 个预测样本对回归模型进行交叉检验。该最优回归模型的浓度预测最大误差为 1.9%, 温度预测最大误差为 0.38%,压强预测最大误差为 1.0%。

关键词: 甲烷; 热液; 正演; 反演

中图分类号: P716^{+}.42 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201847.0903006

Detection of abyssal hydrothermal CH_4 based on optical passive imaging interference technology

Liu Qingsong[1,2], Hu Bingliang[1], Tang Yuanhe[3], Yu Tao[1], Wang Xueji[1,2], Liu Yongzheng[1], Yang Peng[4], Wang Haoxuan[3]

(1. Key Laboratory of Spectral Imaging Technology, Xi′an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi′an 710119, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;
3. School of Science, Xi′an University of Technology, Xi′an 710048, China;
4. Joint Laboratory for Ocean Observation and Detection, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266200, China)

Abstract: An optical passive imaging interference system (OPIIS) was proposed for the real-time and long-term detection of hydrothermal methane′s concentration, temperature and pressure. Firstly, the forward model that consisted of deep ocean gas emission model, seawater transmission model and instrument responding model was built by interface description language (IDL), and its forward

收稿日期: 2018-04-07; **修订日期:** 2018-05-12

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC1403700);国家自然科学基金面上项目(61675165);中国科学院光谱成像技术重点实验室开放基金(LSIT201714D)

作者简介: 刘青松(1991-),男,博士生,主要从事海洋光学、光谱成像技术方面的研究。Email: s-liuqingsong@opt.cn

导师简介: 胡炳樑(1973-),男,研究员,博士生导师,博士,主要从事信号处理,光谱成像技术及其应用方面的研究。Email: hbl@opt.ac.cn

interference fringers were simulated. The SNRs of the forward interference fringes were in the range of (50-70) in general. And the detection sensitivity of concentration measurement is was at least 0.1 mmol/L, the temperature was at least 2 K, and the pressure was at least 0.1 MPa. Then, OPIIS′s data were processed accurately and rapidly by combining imaging interference technology and partial least squares (PLS) algorithm. The multi-dependent variable PLS regression model of methane was established by using 25 modeling samples, and this PLS regression model was cross-validated by using 25 prediction samples. And the max error for concentration prediction of this regression model was 1.9%, for temperature prediction was 0.38%, and 1.0% for pressure prediction.

Key words: methane; hydrothermal; forward; retrieval

0 引 言

甲烷气体是一种无色、无味、易燃易爆的气体，对甲烷气体的检测一直以来都是备受关注的焦点问题[1-2]。海洋溶解甲烷是影响全球气候变化的关键因素之一，是海洋天然气水合物存在的重要证据，同时也是揭示海底热液、冷泉活动规律的重要载体之一[3-4]。原位测量和实验室测量是目前海洋溶解甲烷探测的两种主要方法，国内外科学家均青睐于原位技术开展海洋甲烷探测。现有海洋甲烷原位探测技术及仪器主要为：先利用渗透膜将甲烷从海水中分离出来，再采用电化学法[5]、吸收光谱法[6]、质谱法[7]等方法的原位甲烷检测仪；光纤式原位甲烷传感器[8]；利用甲烷氧化菌的生化反应进行检测的原位生物甲烷传感器[9]。由于深海热液区处于高温、高压和强腐蚀的极端环境，上述绝大多数接触采样式原位甲烷传感器无法满足热液区甲烷的多种探测需求，甚至无法应用于热液环境。鉴于光学测量方法的一系列优势，可以在一定程度弥补现有海洋甲烷测量的技术的不足。根据深海热液的高温环境，文中提出了一种非采样式的光学被动成像干涉系统 (Optical Passive Imaging Interference System, OPIIS)，利用甲烷的辐射光谱及其干涉效应进行深海甲烷的检测，并建立了 OPIIS 的正演模型，对其探测性能进行了仿真，为热液甲烷的探测提供一种新颖的原位探测方法。

基于成像干涉技术[10-11]的 OPIIS 主要利用甲烷辐射谱线形成的干涉条纹来获取甲烷气体浓度，温度和压强等信息。由于基于物理机制的数据反演方法只能逐个计算甲烷参量，不利于仪器数据的快速处理和实时探测，而不考虑物理过程的偏最小二乘法(Partial Least Square, PLS)不仅可以进行单变量的回归分析，也可以用于多变量的回归分析，且具有比多元线性回归、主成分分析等回归模型更高的预测稳定性[12]。因此，文中采用偏最小二乘法建立甲烷辐射光谱与甲烷气体浓度，温度和压强的多因变量 PLS 回归模型，实现对 OPIIS 探测数据的精确、快速处理，从而为海洋热液甲烷的实时和长期观测提供重要支撑。

1 OPIIS 正演研究

正演过程就是将目标参数输入正演模型，从而模拟系统的探测结果。在实际探测系统研制之前进行正演研究，可以评估探测系统的可行性和系统参数对探测性能的影响。根据 OPIIS 的工作原理，建立了包括深海气体辐射模型，海水传输模型和仪器响应模型的正演模型。

1.1 OPIIS 工作原理

热液释放的气体成分主要包括甲烷、硫化氢、二氧化碳，为了减小其他气体对甲烷探测造成干扰，需要尽量避免甲烷辐射谱线与干扰气体谱线重叠，文中挑选出甲烷分子辐射相对干扰气体辐射较强的泛频带 1.64~1.66 μm 范围内的 6 条有效谱线作为目标光源。OPIIS 的基本结构如图 1 所示，甲烷辐射目标谱线经前置系统收集后，以不同角度入射干涉滤光片，由于干涉滤光片的透过率随谱线入射角和波长的不同而改变[13]，从而将不同波长的谱线分离并以平行光束出射，最后经成像透镜成像于探测器上形成 6 条干涉条纹。

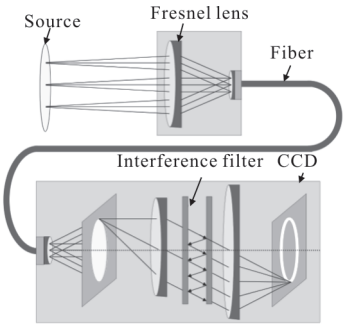

图 1 OPIIS 的工作原理图

Fig.1 Schematic diagram of OPIIS

1.2 OPIIS 正演模型

1.2.1 深海气体辐射模型

文中将深海热液甲烷气体辐射视为灰体辐射，并根据基尔霍夫定律、普朗克函数和朗伯定律推出深海甲烷气体辐亮度的表达式为：

$$L(\lambda,T,P)=\left(1-\mathrm{e}^{-k_{ab}(\lambda,T,P)\cdot d}\right)\cdot\frac{2c^2h}{\lambda^5}\left(\exp^{\frac{ch}{k\lambda T}}-1\right)^{-1} \tag{1}$$

式中：L 为辐射亮度；$k_{ab}(\lambda,T,P)$为吸收系数；d 为吸收光程。

深海热液区通常位于 1~6 km 的海底，因此对深海气体采用洛伦兹线型计算其吸收系数和辐亮度，洛伦兹线性函数可以表示为：

$$\Phi_L(v_0,\ v)=\frac{1}{\pi}\cdot\frac{\alpha_L}{(v_0-v)^2+\alpha_L^2} \tag{2}$$

式中：α_L 为洛伦兹线性谱线线宽；v 为谱线波数。将 HITRAN2016(High Resolution Transmission)分子光谱数据库[14]得甲烷谱线参数带入文中模型中，可以合成甲烷分子在任何浓度，任何温度和任何压强下的辐射光谱。文中建模设置的甲烷浓度范围为 53~200 mmol/L，温度范围为 580~678 K，压强范围 20~32.5 MPa，图 2 所示为部分甲烷辐射光谱。

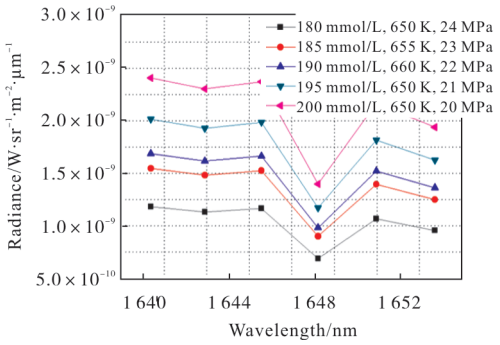

图 2 部分甲烷辐射光谱

Fig.2 Partial radiance curves of methane

1.2.2 海水传输模型

用图 1 所示光学系统探测甲烷的近红外谱线，必须考虑海水对辐射谱线的衰减作用，主要归结为海水介质各组分对光的吸收和散射作用。影响海水光学性质的主要组分包括水分子、有色溶解有机质(Colored Dissolved Organic Matter, CDOM)、浮游植物和非色素悬浮颗粒。文中主要考虑了由纯水、CDOM、浮游植物和非色素悬浮颗粒引起的海水吸收系数，由纯水、浮游植物和悬浮颗粒引起的海水散射系数。根据朗伯定律，海水透过率为：

$$\tau_\lambda=\frac{E_{\lambda,1}}{E_{\lambda,0}}=\exp\left(-\int_0^l k_{ex,\lambda}\mathrm{d}l\right)=$$

$$\exp\left(-\int_0^l (k_{sc,\lambda}+k_{ab,\lambda})\mathrm{d}l\right)=\mathrm{e}^{-k_{ex,\lambda}l} \tag{3}$$

式中：$k_{ex,\lambda}$ 为海水衰减系数；$k_{sc,\lambda}$ 为海水散射系数；$k_{ab,\lambda}$ 为海水吸收系数。文中采用海水对甲烷目标谱线的衰减系数为 580~600 $\mathrm{m^{-1}}$。

1.2.3 仪器响应模型

仪器响应模型主要包括干涉滤光片子模型，照度分布子模型，探测器响应子模型，系统噪声子模型，系统衰减子模型。利用干涉滤光片的透过率随谱线波长和入射角的变化特性，可以将甲烷的 6 条有效谱线分离；在照度分布模型中，分析了谱线经过光学系统后像平面的照度分布规律；利用探测器响应模型和系统衰减模型计算甲烷谱线的信号值；通过系统噪声模型计算系统图像的信噪比。正演模型的主要参数取值范围为：待测气团直径范围 20~50 mm，仪器孔径直径范围 35~50 mm，仪器光学透过率范围 0.7~0.9，干涉滤光片带宽范围 2~3 nm，探测距离 10~60 mm，探测器积分时间范围 20~60 s。

1.3 正演模型灵敏度

利用 IDL 语言对上述正演模型进行编程仿真，如图 3 所示为模拟的 OPIIS 正演干涉图，图中 6 条亮圆环分别对应甲烷 6 条有效谱线，且图中可以明显区分 6 条谱线。正演干涉图的信噪比分布如图 4 所示，其与干涉条纹强度分布一致，信噪比数值处于 50~70 范围内。OPIIS 的探测灵敏度可以根据下式计算：

$$DS=\frac{M}{SNR} \tag{4}$$

式中：DS 为探测灵敏度；M 可以为甲烷气体浓度、温

度或者压强等参量。OPIIS 的浓度探测灵敏度至少为 0.1 mmol/L，温度灵敏度至少为 2 K，压强灵敏度至少为 0.1 MPa。

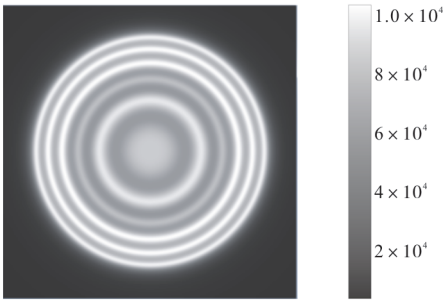

图 3 OPIIS 的正演干涉图

Fig.3 Forward interferogram of OPIIS

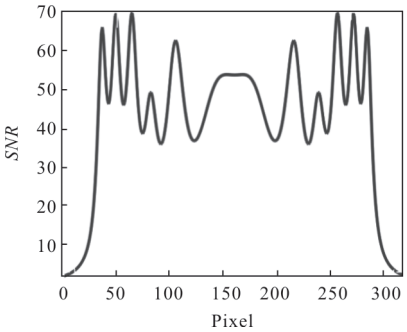

图 4 正演干涉图截面的信噪比

Fig.4 *SNR* of the sectional forward interferogram

2 OPIIS 反演研究

反演过程就是将系统探测结果采用相应的算法进行处理，从而获取探测目标的参量信息。鉴于基于物理机制的反演算法只能逐个计算甲烷参量，不利于仪器数据的快速处理和实时探测。为了同步获取甲烷浓度、温度和压强等多个参数，文中采用成像干涉技术结合偏最小二乘法的数学反演算法进行 OPIIS 的数据处理。

2.1 PLS 回归模型

偏最小二乘法是基于因子分析的多变量回归分析方法，可以建立多个因变量对多个自变量的回归模型[15]。鉴于采用辐亮度光谱参与建模相比于干涉条纹可以引入较少误差，文中以甲烷辐亮度光谱作为自变量，以甲烷浓度、温度和压强的 3 个参量作为因变量，建立甲烷气体辐亮度光谱与分子浓度、温度和压强的 PLS 回归模型，其建模流程图如图 5 所示。

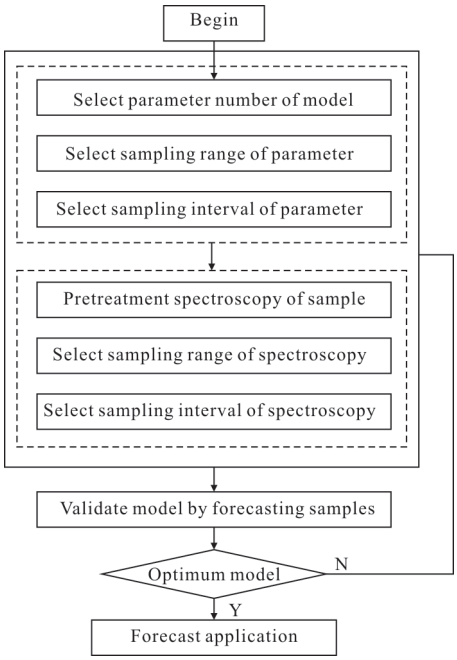

图 5 偏最小二乘法建模流程图

Fig.5 Process flow diagram of PLS modeling

模型预测精度取决于模型预测值和样品标准值的误差。根据建模过程可知，因变量个数、因变量取样范围、因变量取样间隔、光谱预处理、光谱采样范围、光谱采样间隔、主成分个数等是影响模型的预测精度的主要因素。因此需要不断地对上述因素进行优化，直至模型预测精度达到最佳。文中重点分析了不同因变量取值间隔对模型预测精度的影响，通过对比选择最佳因变量取值间隔，使 PLS 回归模型可以获取更为精确的甲烷信息。分别选取气体浓度、温度和压强 3 个参量任意组合的样本 50 个，选取其中的 25 个作为建模样本，其余 25 个作为预测样本，其中浓度取样间隔分别为 2、3、5、10 mmol/L，温度取样间隔 1、2、5、10 K，压强取样间隔 0.05、0.1、0.25、0.5 MPa。文中建模所用的甲烷六条光谱均取自前期建立的合成甲烷光谱数据库，无需进一步预处理。甲烷辐亮度光谱数据的采样范围和间隔都已固定，无需进一步优化处理。PLS 回归模型的参量个数为甲烷浓度、温度和压强 3 个，并且采用交叉有效性检验多参数 PLS 回归模型，通过选择合适的主成分个数使各个模型精度达到最佳。

2.2 模型反演精度

文中最终优化的样本浓度参量取值范围为 53~200 mmol/L，间隔 3 mmol/L，温度参量范围为 580~

678 K,间隔 2 K,压强参量范围为 20~32.5 MPa,间隔 0.25 MPa，光谱采样区间 1.64~1.66 μm，光谱采样间隔 2.5 nm。通过交叉有效性检验回归模型,当主成分数为 3 时,回归模型预测性能最佳,其预测样本的甲烷参量预测误差如图 6~8 所示，其中浓度预测最大误差为 1.9%,温度预测最大误差为 0.38%,压强预测最大误差为 1.0%,相应的模型预测精度浓度为 3.8 mmol/L,温度为 2.6 K,压强为 0.33 MPa。

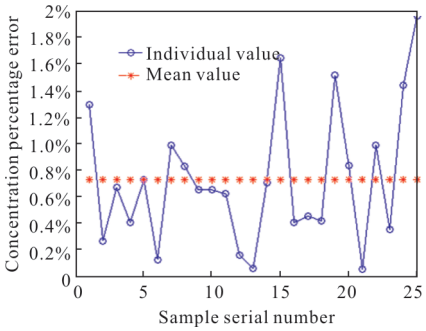

图 6 预测样本的浓度误差

Fig.6 Concentration errors of forecasting samples

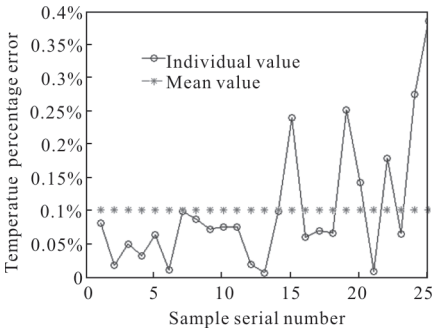

图 7 预测样本的温度误差

Fig.7 Temperature errors of forecasting samples

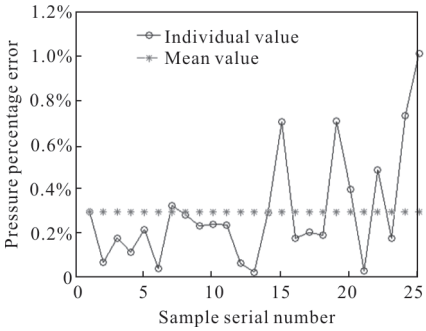

图 8 预测样本的压强误差

Fig.8 Pressure errors of forecasting samples

3 结 论

文中提出了一种新颖的光学被动成像干涉系统 OPIIS 用于热液甲烷浓度、温度和压强信息的实时、长期探测，主要对 OPIIS 探测甲烷的正演仿真和数据反演进行研究。

为了评估 OPIIS 的可行性和性能，利用 IDL 语言建立了包括深海气体辐射模型，海水传输模型和仪器响应模型的正演模型。基于气体辐射模型建立 OPIIS 的探测理论；在海水传输模型中分析了由海水主要成分引起的光谱吸收和散射;在仪器响应模型中对系统主要部件进行了分析并模拟仿真了探测结果。从正演干涉图中可以明显区分甲烷的 6 条谱线,干涉图的信噪比为 50~70,且浓度探测灵敏度为 0.1 mmol/L，温度灵敏度为 2 K，压强灵敏度为 0.1 MPa。正演结果表明,文中初步设计的 OPIIS 用于探测热液甲烷是可行的。

同时,为了从 OPIIS 的干涉条纹中准确、快速的反演出甲烷浓度、温度和压强等信息,文中采用成像干涉技术结合偏最小二乘法的方法进行 OPIIS 数据的反演。利用 25 个建模样本建立了甲烷分子辐射亮度光谱与分子浓度、温度和压强的多参数回归模型,并利用 25 个预测样本对回归模型进行交叉检验。该最优回归模型的浓度预测最大误差为 1.9%,温度预测最大误差为 0.38%，压强预测最大误差为 1.0%,相应的预测精度至少为浓度 3.8 mmol/L,温度 2.6 K,压强 0.33 MPa。反演结果表明,文中反演算法可以快速精确地获取热液甲烷气体的浓度、温度和压强信息。

参考文献:

[1] Li Zhe, Zhang Zhirong, Sun Pengshuai, et al. Multi-point full range monitoring of methane based on TDLAS technology [J]. ***Infrared and Laser Engineering***, 2017, 46(9): 0917009. (in Chinese)

[2] Zeng Xiangbao, Wang Haixu, Wang Zhongmin, et al. Methane detection system performance improvement based on sawtooth modulation half-wave scanning technology [J]. ***Infrared and Laser Engineering***, 2017, 46(8): 0817003. (in Chinese)

[3] Farías L, Sanzana K, Sanhueza-Guevara S, et al. Dissolved methane distribution in the Reloncaví fiord and adjacent marine system during austral winter (41°-43° S) [J]. ***Estuarine Coastal and Shelf Science***, 2017, 40: 1592-1606.

[4] Li Y H, Zhan L Y, Zhang J X, et al. Equilibrator-based measurements of dissolved methane in the surface ocean using an integrated cavity output laser absorption spectrometer [J]. ***Acta Oceanologica Sinica***, 2015, 34 (6): 34-41.

[5] Shen Zhengwei, Sun Chunyan, He Huice, et al. The principle and applied research of in-situ METS for dissolved methane measurement in deep sea [J]. ***Journal of Ocean Technology***, 2015, 34 (5): 19-25. (in Chinese)

[6] Boulart C, Connelly D P, Mowlem M C. Sensors and technologies for in situ dissolved methane measurements and their evaluation using Technology Readiness Levels [J]. ***Trends in Analytical Chemistry***, 2010, 29(2): 186-195.

[7] Kogan V T, Lebedev D S, Pavlov A K, et al. A portable mass spectrometer for direct monitoring of gases and volatile compounds in air and water samples [J]. ***Instruments Experimental Techniques***, 2011, 54 (3): 390-396.

[8] Boulart C, Mowlem M C, Connelly D P, et al. A novel, low cost, high performance dissolved methane sensor for aqueous environments [J]. ***Optics Express***, 2008, 16 (17): 12607-12617.

[9] Wen G M, Zheng J, Zhao C G, et al. A microbial biosensing system for monitoring methane [J]. ***Enzyme and Microbial Technology***, 2008, 43: 257-261.

[10] Sargoytchev S I, Brown S, Solheim B H, et al. Spectral airglow temperature imager (SATI): a ground-based instrument for the monitoring of mesosphere temperature [J]. ***Applied Optics***, 2004, 43 (30): 5712-5721.

[11] Tang Y H, Duan X D, Gao H G, et al. GBAII: A ground based airglow imaging interferometer Part 2: Forward model and inverse method [J]. ***Applied Optics***, 2014, 53 (11): 2272-2282.

[12] Ouyang Aiguo, Tang Tianyi, Wang Haiyang, et al. Detection of key performance indicators of ethanol diesal by the infrared spectroscopy method [J]. ***Chinese Optics***, 2017, 10(3): 363-369. (in Chinese)

[13] Tang Yuanhe, Wang Shuhua, Cui Jin, et al. Study on the forward of mashgas CO temperature and concentration by the remote passive measurement [J]. ***Acta Physica Sinica***, 2016, 65 (18): 184201. (in Chinese)

[14] Gordon I E, Rothman L S, Hill C, et al. The HITRAN2016 molecular spectroscopic database [J]. ***Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer***, 2017: TJ08.

[15] Qiao Xiaoyan, Wang Yanjing, Li Gang. Prediction of acetamiprid residues by fluorescence spectroscopy based on PLS method [J]. ***Optics and Precision Engineering***, 2010, 18(11): 2369-2374. (in Chinese)