

周波数変調微量気体計測法における変調周波数と線幅の関係
 Modulation Frequency and Line Width of the Frequency Modulation Spectroscopy
 for Trace Gas Measurements

北見 淳 , 竹内 延夫

Jun Kitami and Nobuo Takeuchi

千葉大学映像隔測研究センター

Remote Sensing and Image Research Center, Chiba Univ.

Abstract : The second harmonic frequency signal of the frequency modulation spectroscopy was studied in a case of the exact solution using Bessel function. The optimum condition for the second harmonic frequency signal was studied as the function of modulation frequency amplitude for wide ranges of modulation frequency and absorption frequency width. Also the effect of external noise was studied so that external noise more than 20% of the output signal gives significant effect.

1. はじめに

微量気体の濃度計測法として長光路吸収方式がある。これは微量気体の吸収線に同調したレーザー光の減衰量からその濃度を求めることを基本原理としている。この長光路吸収方式の一つに周波数変調法があり、Cooperらによって指数項のベッセル関数展開による厳密解を得る方法が提案されている。本研究では周波数変調法の一つである2次高調波成分検出法において、ある吸収線幅に対して検出感度を最適にする変調周波数を推定するためにコンピュータシミュレーションを行った。また計測におけるノイズが2次高調波成分に与える影響を検討した。

2. 周波数変調法

試料セルに入った微量気体の濃度を調べる場合、Fig. 1のような装置においてレーザー光源の振幅 $E_0(t)$ を $E_0(t) = E_0 \sin(\omega_L t)$ で表す。ただし、 ω_L は光源の角周波数で気体の吸収線の中心角周波数に近いように選ぶ。これを変調指数 β 、変調角周波数 $\omega_F (= 2\pi\nu_F, \nu_F$: 変調周波数) で周波数変調することで試料への入射光 $E_{in}(t)$ は

$$E_{in}(t) = E_0 \cdot \sin(\omega_L t + \beta \sin \omega_F t) = \text{Im}(E_d(t) \cdot \exp(i\beta \sin \omega_F t)) \quad (1)$$

で表される。また、位相変調成分はベッセル関数に換算して展開すると

$$\exp(i\beta \sin \omega_F t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) \exp(in\omega_F t) \quad (2)$$

となり、

$$E_{in}(t) = E_0 \cdot \text{Im} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) \exp(i(\omega_L + n\omega_F)t) \quad (3)$$

$\tilde{E}_{in}(\omega)$ を $E_{in}(t)$ のフーリエ変換とすれば

$$\tilde{E}_{in}(\omega) = 2\pi E_0 \cdot \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) \delta(\omega - \omega_L + n\omega_F) \quad (4)$$

これが試料セルを通ると

$$\begin{aligned} \tilde{E}_m(\omega) &= \tilde{E}_{in}(\omega) \cdot \exp\left[-\frac{\tau(\omega)}{2} - \frac{i\phi(\omega)}{2}\right] \\ &= 2\pi E_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) \cdot \exp\left[-\frac{\tau(\omega_L + n\omega_F)}{2} - \frac{i\phi(\omega_L + n\omega_F)}{2}\right] \end{aligned} \quad (5)$$

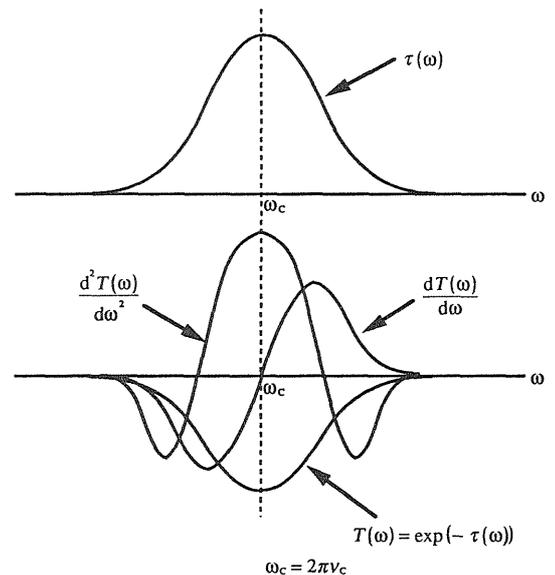


Fig. 2 Relation between the optical depth and its derivative forms of transmission

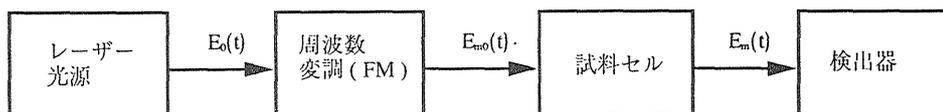


Fig.1 Block diagram of the frequency modulation spectroscopy

となる。ただし、 $\tau(\omega)/2$ 、 $\phi(\omega)/2$ は試料を通過する際に入射光振幅が受ける減衰係数、および位相差である。時間空間での振幅 $E_m(t)$ は

$$E_m(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \exp(i\omega t) \tilde{E}_m(\omega) \quad (6)$$

透過光強度 $I_m(t)$ は

$$I_m(t) = \frac{c}{8\pi} |E_m(t)|^2 = \frac{c}{8\pi} E_0^2 \cdot \sum_{n=-\infty}^{\infty} \sum_{n'=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) J_{n'}(\beta) \times \exp[i(n-n')\omega_F t - \tau(\omega_L + n\omega_F) - \tau(\omega_L + n'\omega_F) - i\phi(\omega_L + n\omega_F) + i\phi(\omega_L + n'\omega_F)] \quad (7)$$

ここで $n - n' = \pm 2$ となるように選ぶのが2次高調波成分検出法であり、 $\phi_n = \phi(\omega_L + n\omega_F)$ とし、 $\phi_n = \phi_{n'} = \Phi$ とおくと $2\omega_F$ 成分は

$$I^{2\omega_F}(t) = \frac{c}{8\pi} E_0^2 \cdot 2\cos(2\omega_F t) \times \left\{ -J_1(\beta)^2 \cdot \exp(-\tau_1 - \tau_1) + \sum_{n=1}^{\infty} J_{n-1}(\beta) J_{n+1}(\beta) [\exp(-\tau_{n-1} - \tau_{n+1}) + \exp(-\tau_{(n-1)} - \tau_{(n+1)})] \right\} \quad (8)$$

となる。また、 $n - n' = \pm 1$ としたものを一次高調波成分検出法と呼ぶ。Fig.2のように1次高調波成分が吸収の中心周波数 ν_c でゼロ出力を与えるのに対し、2次の高調波成分は中心周波数で出力がピークとなるため、濃度計測によく用いられる。

3. 変調周波数と線幅

入射光振幅が受ける減衰係数、すなわち気体の透過率 $T(\omega)$ は $T(\omega) = \exp(-\tau(\omega))$ で表せる。ただし

$$\tau(\omega) = \frac{\tau_0}{1 + \left(\frac{\omega - \omega_c}{\Delta\omega}\right)^2} \quad (9)$$

ここに τ_0 は中心周波数での光学的厚さ、 ω_c は気体の吸収線の中心角周波数、 $\Delta\omega$ は透過率の半値半幅である。すなわちFig.3のように中心角周波数 ω_c からずれる度合により透過率が変化する。 ω は

$\omega = \omega_L + n\omega_F$ と書くことができ、 n 番目のサイドバンドの角周波数を表す。Fig.3に示すように、周波数変調により掃引する角周波数変調幅を $\Gamma\Delta\omega$ 、また透過率の半値半幅 $\Delta\omega$ に対する変調角周波数 ω_F の比を δ とすると

$\beta = \frac{\Gamma\Delta\omega}{\omega_F}$ 、 $\delta = \frac{\omega_F}{\Delta\omega}$ より $\Gamma = \beta\delta$ となる。ここで変調指数 β は変調幅の中に含まれるサイドバンドの数を表す。また、 n 番目のサイドバンドの

光学的厚さ τ_n は $\varepsilon = \frac{\omega_L - \omega_c}{\Delta\omega}$ とすると、

$$\tau_n = \tau(\omega_L + n\omega_F - \omega_c) = \frac{\tau_0}{1 + (\varepsilon + n\delta)^2} \quad (10)$$

で表せる。

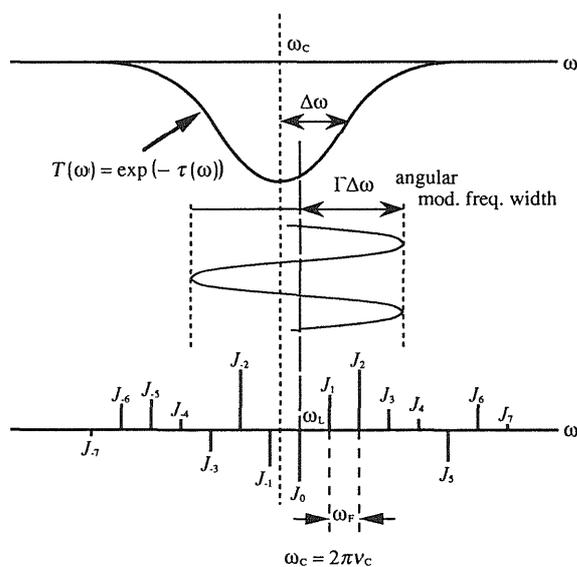


Fig. 3 Concepts of modulation frequency and line width

4. 2次変調成分のシミュレーション

ここでは中心周波数で光学的厚さ τ_0 、透過率の半値半幅に対する変調角周波数の比 δ 及び掃引する周波数幅と半値半幅との比 Γ によって2次高調波成分がどのような作用を受けるかコンピュータシミュレーションを行った。以下での2次高調波成分 $I_{2\omega}$ の扱いは式(8)で τ_0 、 δ 、 Γ によらない項

を除いた

$$I_{2\omega} = -J_1(\beta)^2 \cdot \exp(-\tau_1 - \tau_1) + \sum_{n=1}^{\infty} J_{n-1}(\beta) J_{n+1}(\beta) [\exp(-\tau_{n-1} - \tau_{n+1}) + \exp(-\tau_{(n-1)} - \tau_{(n+1)})] \quad (11)$$

とする。また今回は $\varepsilon = 0$ の場合についてのみの考察にとどめた。

5. 計算結果

Fig. 4に見られるように、ベッセル関数を展開していくとき、ある次数以上からは2次変調成分が収束していることがわかる。この収束を与える次数 n は、ほぼ $\beta (= \Gamma / \delta)$ で与えられる。また、透過率の半値半幅に相当する周波数に対する変調周波数の比 δ を細かくするほど、 $n = \beta$ の2次高調波成分が収束値に近づく。Fig. 5は掃引する周波数幅と半値半幅の比 Γ と2次高調波成分の関係であり、 $\tau_0 = 2.0$ 、 $\delta = 0.01$ のとき Γ は3.4で最も大きい収束値を与える。また、このとき光学的厚さ τ_0 を厚くすると二次高調波成分の最大収束値を与える Γ が大きい値にシフトすることがわかる。また変調周波数は吸収線幅より小さいか、それに近いとき検出感度が良いとされているが、最大収束値を与える Γ で δ を変化させたときのシミュレーションを行ったところ、Fig. 6に示すような結果を得た。これより変調周波数は吸収線幅の半値半幅の $1/10 \sim 1/100$ が適当であると考えられる。

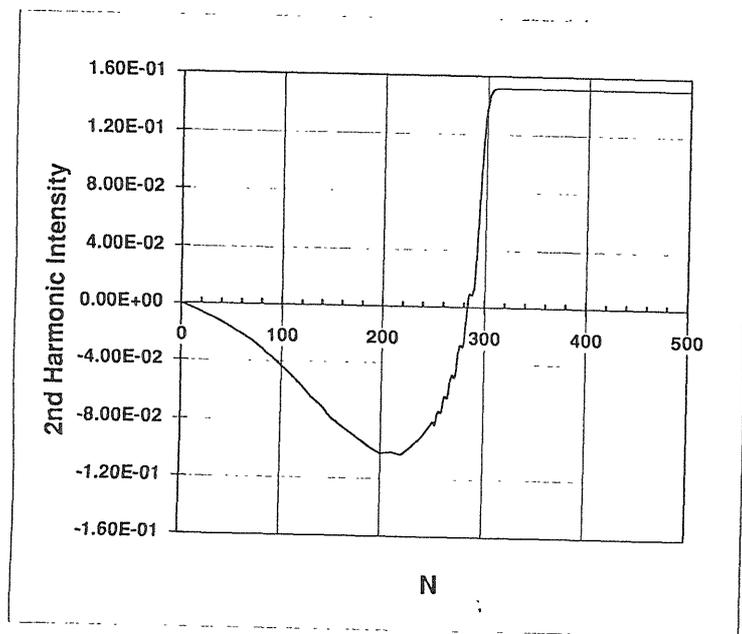


Fig.4

Fig.4 2nd Harmonic Intensity in case of
optical depth = 2, mod. freq. / half width = 0.01,
mod. amplitude / half width = 3.0

Fig.5 Change of optimum modulation amplitude
O.D. = Optical Depth

Fig.6 Change of optimum modulation frequency

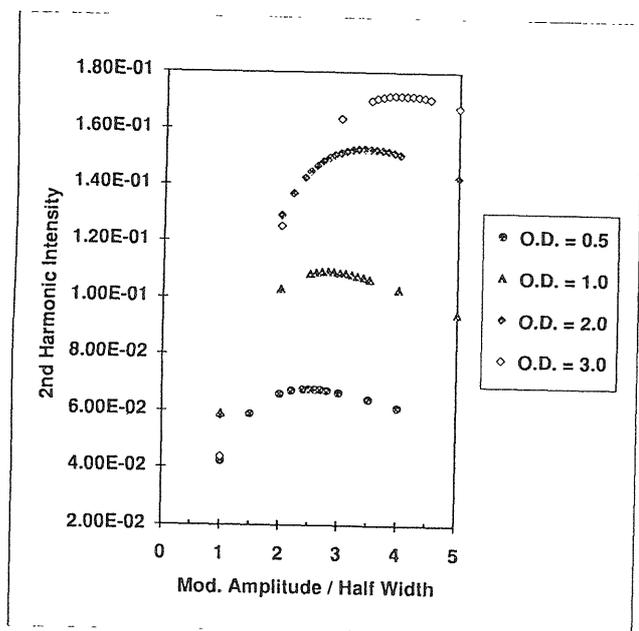


Fig.5

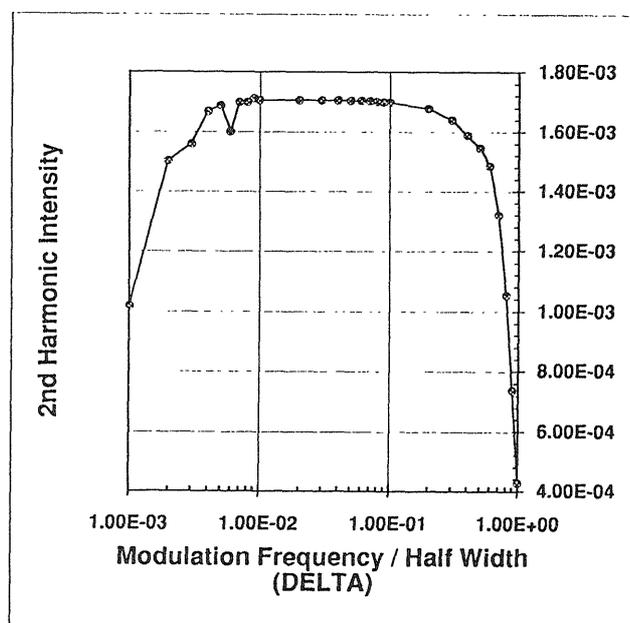


Fig.6

6. 計測における雑音の検討

周波数変調法で2次高調波成分が検出器、増幅器等での雑音に対してどの程度有効であるか検討を行った。透過光強度の振幅に対して雑音を入れることとし、サイドバンドの振幅 $J_n(\beta)$ に対し一様乱数を付加することにより2次高調波成分出力をシミュレートした。雑音の振幅はFig.7に示すようにベッセル関数の振幅が一様になっている部分の振幅を基準とした。基準振幅に対していくつかの割合で雑音を付加したところFig.8に示す結果を得た。この結果を見ると、基準振幅に対し10~20%の雑音幅であれば2次高調波成分に殆ど影響を与えないことがわかった。

7. むすび

2次高調波成分検出法において、検出感度を最適にする変調振幅および変調周波数をコンピュータシミュレーションによって検討した。その結果、光学的厚さが薄い場合(0.1以下)、変調振幅は吸収線幅の半値半幅のほぼ2.2倍のとき、また変調周波数は半値半幅のほぼ1/100のとき最大検出感度を得ることがわかった。また外部雑音に対しては2次高調波成分出力の10~20%の雑音幅であれば計測に殆ど影響を与えないことがわかった。

参考文献

- 1) Cooper D.E., R.E. Warren, "Two-tone optical heterodyne spectroscopy with diode lasers : theory of line shapes and experimental results," J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 4, No. 4, 470-480 (1987)
- 2) Silver J.A., "Frequency-modulation spectroscopy for trace species detection : theory and comparison among experimental methods," Appl. Opt., Vol. 31, No. 6, 707-717 (1992)

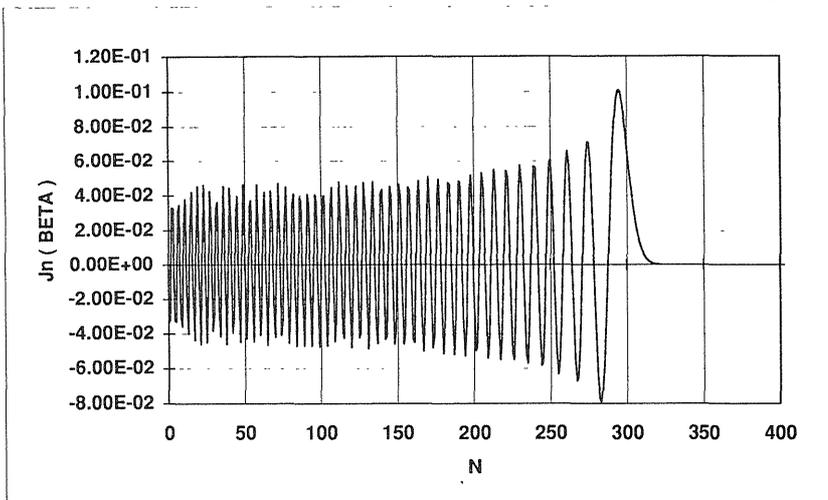


Fig.7 Bessel function $J_n(\beta)$, $\beta = 300$

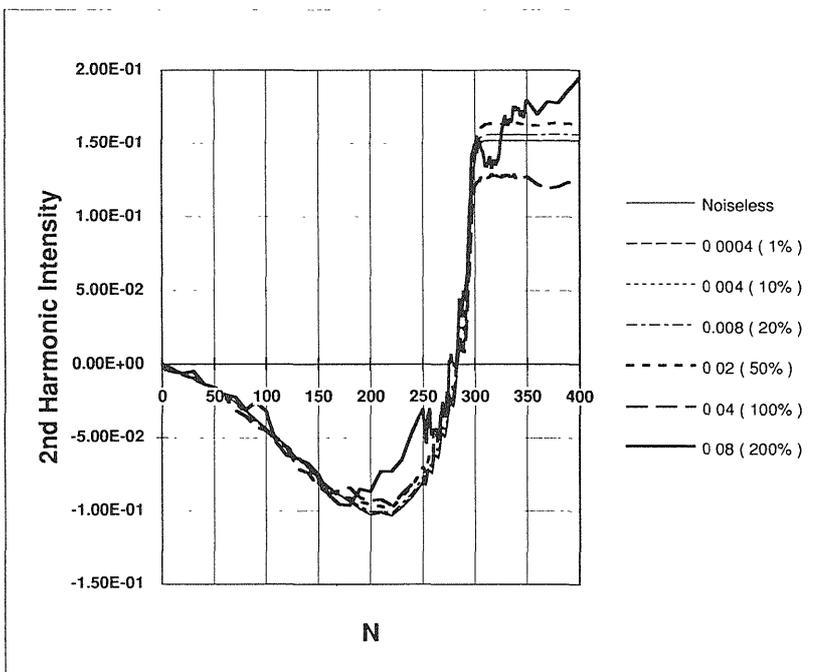


Fig.8 Effect of external noise