

デュアルコム分光による非接触リモート計測の検討

武子 尚生¹, 内山 竜成¹, 窪田 光佑¹, 宮崎 俊行¹, 杉山 陽平²,
洪 鋒雷², 中嶋 善晶¹

¹ 東邦大学 (〒274-8510 千葉県船橋市三山 2-2-1)

² 横浜国立大学 (〒240-0067 神奈川県横浜市保土ヶ谷区常磐台 79-5)

Investigation of non-contact remote measurement by dual-comb spectroscopy

Naoki TAKESHI¹, Ryusei Uchiyama¹, Kousuke Kubota¹, Toshiyuki MIYAZAKI¹,
Yohei Sugiyama², Feng-Lei HONG², and Yoshiaki NAKAJIMA¹

¹ Toho Univ., 2-2-1 Miyama, Funabashi, Chiba 274-8510

² Yokohama National Univ., 79-5 Hodogaya, Yokohama, Kanagawa 240-0067

Abstract: We have proposed and demonstrated a new analysis method for gas temperature measurement using dual-comb spectroscopy. In addition, the analysis process was simplified by streamlining the process of normalizing the obtained spectrum.

Key Words: Optical frequency comb, Spectroscopy, gas sensing

1. はじめに

気体ガス温度計測は、環境モニタリングや産業応用など幅広い分野において重要である。現在、気体の温度測定には光ファイバ温度計や放射温度計などが用いられているが、実用上は 10℃ 程度の測定精度の物が多く、適用温度測定範囲に制約がある。一方、レーザーを用いた吸収分光に基づくガス温度計測手法は波長可変ダイオードレーザー吸収分光法(TDLAS)が多く報告されている。TDLAS は高感度かつ高分解能でガス分光が可能な手法であるが、複数の吸収スペクトルの同時取得が難しい。

これに対し、多数の高精度レーザー群に相当する光コムを 2 台用いたデュアルコム分光(DCS)¹⁾を用いたガス吸収分光を行い、スペクトルを解析することでガス温度計測を取得する、Rotational-state Distribution thermometry (RDT)²⁾が報告されている。この手法は、デュアルコム分光の広帯域性を利用したスペクトル解析手法であり、吸収分光で取得されるスペクトル形状が Boltzmann 分布に従うことを利用しガス温度を決定する。しかし、DCS によって取得されたスペクトルを吸光度スペクトルに変換し、非線形な式を用いて Fitting を行う必要があるため、解析プロセスを複雑にしている。この問題を解決するために本研究では、スペクトル解析プロセスの簡易化を行いながらガス温度の決定を試みた。これにより RDT 法に比べ簡便に吸光度スペクトルの計算が可能となり、Fitting に必要なパラメータ数の削減に成功した。本講演では簡易化された解析プロセスの詳細と近赤外領域でのガス分光の結果について報告し、将来的な非接触リモート化に向けた議論を行う。

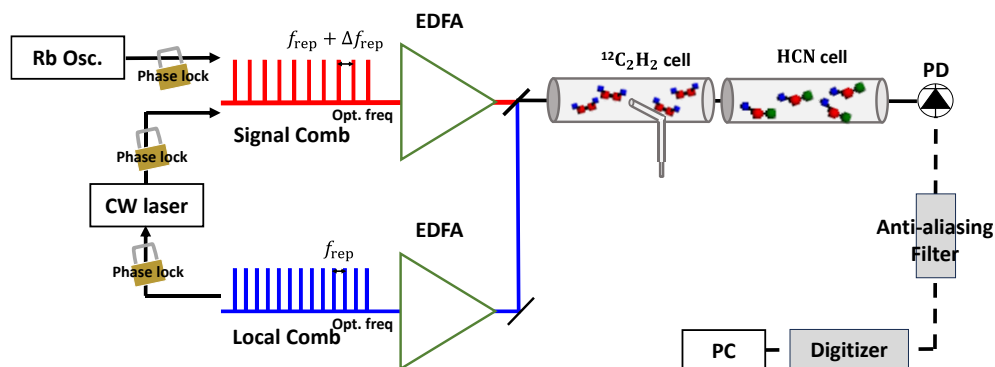


Fig. 1 Experimental setup

2. 本研究のセットアップ

本研究では、Fig.1 に示すように、2 台の Er モード同期ファイバレーザを基に構成された DCS 分光システムを用いて、近赤外領域に振動回転遷移による吸収をもつアセチレン($^{12}\text{C}_2\text{H}_2$)ガスとシアン化水素(HCN)ガスの同時分光測定を行った。2 台のモード同期 Er ファイバレーザの繰り返し周波数 f_{rep} は 100 MHz であり、アセチレンガスとシアン化水素ガスの振動回転遷移による吸収を同時計測するために、Er 添加光ファイバ増幅器(EDFA)を構築し光コムのスペクトルを広帯域化し、2 台の繰り返し周波数差 Δf_{rep} を 358 Hz に設定した。光コムの n 番目のモード周波数は繰り返し周波数 f_{rep} キャリア・エンベロープ・オフセット周波数 f_{ceo} から $f_n = f_{\text{ceo}} + n f_{\text{rep}}$ で表され、 f_{rep} と f_{ceo} はマイクロ波周波数であるため周波数カウンタ等で計測可能である。DCS 分光システムでは 2 台の光コムを Rb 基準信号に安定化することによって mHz の精度で測定が可能であり、CW レーザとそれぞれの光コムのコムモードとのビート信号を検出することにより 2 台の光コムの相対周波数安定化を行うことで、2 台の光コムによる干渉信号（インターフェログラム (IGM)）を取得する。2 台の光コムを干渉させた後に $^{12}\text{C}_2\text{H}_2$ と HCN のガスセルに透過し、高速受光器 (PD) とデジタイザを用いて IGM を電気信号として取得した。

3. 解析原理

ガス温度・濃度の決定には取得したインターフェログラムから吸光度スペクトルに変換する必要がある。そのためには規格化透過率スペクトルを取得する必要がある。従来法では多項式 Fitting³⁾やリファレンススペクトル⁴⁾を利用してベースラインを取得して規格化を行うが、本研究では簡易的に規格化するために IGM のセンタバースト信号と分子由来の信号である自由誘導減衰信号(FID)を時間軸上で分離することで仮想的なベースラインスペクトルを取得した。この手法はリファレンススペクトルを取得するための 2 回の計測が必要なく、多項式 Fitting による Fitting 精度の制限も受けない簡便な手法である。透過率スペクトルはランベルトベールの法則に基づいて吸光度スペクトルに変換すればこれらのプロセスを簡易的に行うことができる。本研究ではランベルトベールの法則を自然対数定義のものを使用しているに留意されたい。

ランベルトベールの法則によると透過率 T は

$$T = \exp(-\alpha V(\tilde{\nu})) \quad (1)$$

ここで α [cm^{-1}]は積分吸光度であり、 $V(\tilde{\nu})$ は形状関数である。圧力広がりなどがある場合、形状関数は Gauss 関数と Lorentz 関数の畳み込みである Voigt 関数が定義される。

吸光度は

$$A = -\ln(T) = \alpha V(\tilde{\nu}) \quad (2)$$

であるため、形状関数が面積で規格化されていれば吸光度を波数で積分したものが積分吸光度となる。よって濃度 N [molecule/ cm^3]は遷移強度 S [$\text{cm}^{-1}/\text{molecule cm}^{-2}$]と光路長 L [cm]を用いて

$$N = \frac{\alpha}{SL} \quad (3)$$

となり、吸光度スペクトルから濃度が推定できる⁵⁾。

ガス温度は回転量子数 J にある分子数占有率が Boltzmann 分布に従うことから推定できる。回転量子数 J の分子数占有率 n は

$$n \propto (2J + 1) \exp\left(-\frac{hc\tilde{B}J(J + 1)}{k_B T}\right) \quad (4)$$

となる。吸光度は分子数占有率に比例するので Rotational-state Distribution thermometry によれば以下の式で表される。

$$A(\tilde{\nu}_{\text{max}}) = \beta(NT, \mu_v, L) \exp\left(-\frac{hc\tilde{B}J(J + 1)}{k_B T}\right) |m| g_l F(m) \quad (5)$$

ここで m はインデックスナンバーであり、R branch では $m = J + 1$ 、P branch では $m = -J$ の値をとる。 g_l は核スピン多重度で回転量子数の偶奇に応じて異なる値をとる分子固有の値である。 $F(m)$ は Herman Wallis Factor であり、インデックスナンバーに依存する補正項である。

よってガス温度は吸光度スペクトルを Fitting から求めることができ、リファレンスを必要とすることなく熱力学的温度が測定可能となる。しかし式(5)は非線形項を含んでいるため十分なデータ点がない場合、Fitting を行うことができない。

$$\ln\left(\frac{A(\tilde{\nu}_{\text{max}})}{|m|}\right) = -\frac{hc\tilde{B}}{k_B T} J(J + 1) + \text{const.} \quad (6)$$

そこで本研究では RDT 方程式に $\log$ をとった Log RDT 方程式(LRDT)によって温度を決定した。線形化することで少ないデータ点で温度が評価でき、分子固有の値である核スピン多重度を定数項として分離することができる。

4. 解析結果

Fig. 2(a)に示すのは簡易規格化手法によって取得したアセチレンガスとシアン化水素の透過率スペクトルである。簡易規格化手法によって取得した透過率スペクトルは解析のためにガス種ごとの分離した透過率スペクトルを求めプロットしている。解析では分離した透過率スペクトルを吸光度スペクトルに変換することで上述した解析手法を行った。Fig. 2(b)に示すのは分離した吸光度スペクトルを LRDT によって線形 Fitting を行ったものである。吸光度スペクトルを Voigt 関数により Fitting し、ピークの値を換算して線形化を行った。LRDT による線形 Fitting の結果から参照温度 22.5 ± 0.5 °C に対して 23.81 °C と決定できた。また LRDT に基づいた温度を利用して濃度推定を行った。各吸収線は Voigt 関数により積分吸光度を取得しているため、式 (3) によって濃度を算出した。ここで遷移強度 S は温度に依存する項なので LRDT の解析結果を用いた。使用したアセチレンガスのガスセル仕様値では 1000 Pa であったため、状態方程式から分子数密度を求めると、 2.45×10^{17} [molecule/cm³]であることが分かった。一方で吸光度スペクトルから算出された濃度は 2.46×10^{17} [molecule/cm³]であり、LRDT で算出した解析温度に基づいて濃度を推定することが可能であることを実証した。本講演では温度決定の詳細な議論と解析結果、また濃度計測の詳細な結果について報告する。

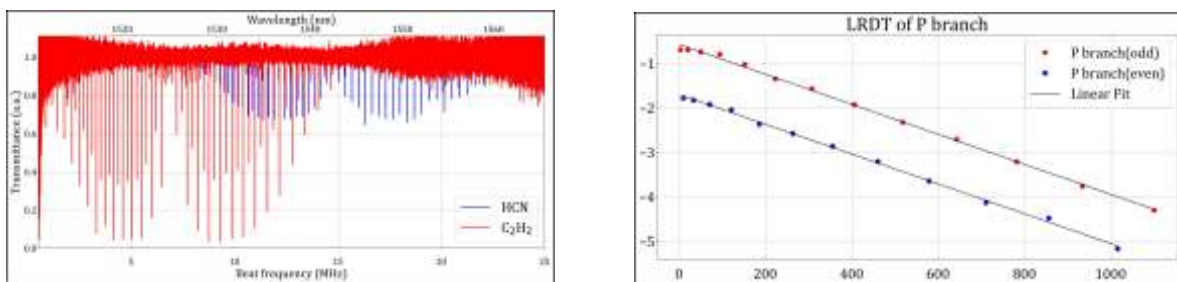


Fig. 2(a) Transmittance spectrum of acetylene (red) and hydrogen cyanide (blue).

Fig. 2(b) LRDT profile of Acetylene's P branch.

参考文献

- 1) I. Coddington, N. R. Newbury, and W. C. Swann, "Dual-comb spectroscopy", Optica 3 (2015) 082402.
- 2) Y. Shimizu, S. Okubo, A. Onae, K.M.T. Yamada, and H. Inaba, "Molecular gas thermometry on using dual-comb spectroscopy: analysis of rotational energy distribution," Appl. Phys. B 124, 71 (2018).
- 3) G.W. Truong, E.M. Waxman, K.C. Cossel, E. Baumann, N.R. Newbury, and I. Coddington, "Accurate frequency referencing for fieldable dual-comb spectroscopy," Opt. Express 24, 26 (2016).
- 4) H. Kato, Y. Sugiyama, K. yoshii, and Feng-Lei Hong, "Spectral normalization in dual-comb spectroscopy of acetylene using a sealed gas cell and a liquid nitrogen trap," J. Opt. Soc. Am. B 38, 1024 (2021).
- 5) S. Okubo, K. Iwakuni, K.M.T. Yamada, H. Inaba, A. Onae, Feng-Lei Hong, H. Sasada, "Transition dipole-moment of the band of acetylene measured with dual-comb Fourier-transform spectroscopy," J. Mol. Spectrosc. 341, 10-16 (2017).