

報 文

波長可変な半導体レーザを用いた大気分析装置における濃度計算式の開発

岡山職業訓練短期大学校 森本 洋・宮内 克之

Development of a Signal Discrimination Formula
in an Absorptiometer Using a Tunable Laser Diode

Yoh Morimoto · Katsuyuki Miyauchi

要 約 大気中の微量ガス成分の濃度計測において特定ガスの濃度計算式を提案するものである。この方法は測定されたデータをそれぞれ1つのベクトルとみなし、直交するベクトルの内積は零である事を利用して相関演算するものであって、測定値に含まれている水蒸気などの妨害スペクトルの影響を完全に排除する事が可能である。この時、妨害スペクトルの絶対値は必要とされないという特徴を有している。計算機シミュレーションによって評価したところ、測定回路には雑音を含まないと仮定したときには妨害スペクトルのなかに埋もれた10万分の1の大きさの信号成分についてその濃度を正確に算出する事が確かめられた。

I 緒言

大気汚染の問題が提起されて久しく特に地球の温室効果については世界的な問題になっている。その原因はメタンや炭酸ガスの濃度に関係するとされているが現在実用に供されているこの種の測定装置は大型で高価であり可搬性とほしく実時間測定が困難であるという欠点を有している。¹⁾

また大気中には無数の種類のガスが含まれているため測定対象ガス（以下ターゲットガスと称する）の分光吸収スペクトルの近傍かまたは重畳して他のガス（以下妨害ガスと称する）の吸収スペクトルが存在する事がありその影響を排除して常に正確な測定結果を得るための処置が必要である。

以上のような事を踏まえて本研究においては半導体レーザを光源とし分光吸収現象を用いてリアルタイムで測定可能な小型・可搬式の大気分析装置を開発する一環として、上記の障害があっても実用に供し得る濃度測定装置を構成するために必要な基本構成と濃度計算式を解析し、導出した。

II 基本構成

1) ハードウェアの概要

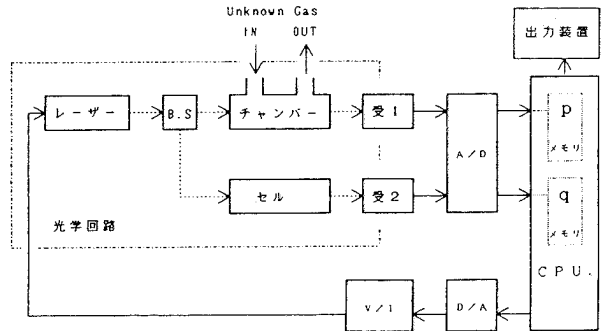


図1 基本構成

図1に基本構成を示す。光学系と電子回路部分についての動作を以下のように仮定する。

まず光学系については以下のとおりである。

- 1) 光源としてレーザダイオード（以下レーザと称する）を用い、注入電流を増減させる事によって発振波長を変化させ測定対象ガススペクトルの近傍を掃引する。

- ②レーザー光をビームスプリッタ(B.S.)などで2光路に分割する。
 - ③メジャリングチャンパー(以下チャンパーと称する)は未知ガスを導入してレーザー光を通過させる筒状体である。
 - ④レファレンスセル(以下セルと称する)は測定対象ガスの標準濃度のものを封入したもので形状は③のチャンパーと同様なものとする。
 - ⑤受光器1、および受光器2はそれぞれの透過光を電気信号に変換するフォトダイオードである。
 - ⑥以上に述べた光学系においてレーザーと受光器1、受光器2への光路長は等しいものとする。
 - ⑦光学系は光学的外乱や電気的外乱をさけるため金属製の箱の中に納められるものとする。
- 次に電子回路部分についての動作は以下の通りである。
- ①A/D変換器は受光器1、受光器2の信号をそれぞれ増幅した後、同時にデジタル変換して計算機に取り込む。
 - ②D/A変換器は計算機からのデータを電圧信号に変換する。
 - ③V/I変換器は電圧信号を電流信号に変換して光源であるレーザーを駆動する。
 - ④出力装置は計算結果などを表示する。

2) ソフトウェアの概要

計算機はD/A変換器、V/I変換器を介してレーザーのある波長で発振させる。この時の受光器1、受光器2の出力信号をA/D変換器で同時にサンプリングしてそれぞれ対応するメモリ郡P、Qに格納する。

以下同様に計算機出力データを変化させる事によってレーザーの発振波長を微小量ずらせて上記処理を繰り返し受光器1、受光器2の信号を順序よくメモリ郡P、Qに格納する事により、ある波長域における分光吸収スペクトルを採取する事ができる。

III 濃度計算式

図2は得られた分光吸収スペクトルの1例を示す。横軸はレーザーに供給された電流値であり従ってレーザー光の波長に關係するものであるが具体的には採取された

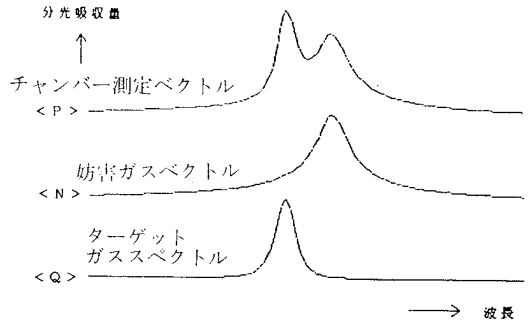


図2 スペクトル例

スペクトルの部分データの順番に相当している。

縦軸は分光吸収量である。

<P>はチャンパーを通過してメモリPに格納されたデータを採取順にならべたものであり妨害ガスのスペクトルを含んでいる。

<Q>はセルを通過してメモリQに格納されたデータを採取順にならべたものであり、ターゲットガスのみが既知濃度で封入されたものの分光吸収スペクトルである。

<N>はチャンパー内に存在する妨害ガスのスペクトルを仮定したものであり、説明の簡便のためにその信号強度は<Q>に対して1:1であるとしている。即ち、図2の例は、 $\langle P \rangle = \langle Q \rangle + \langle N \rangle$ の關係にあると仮定したものを示している。

ここで<P>、<Q>、<N>はそれぞれn個の採取データによって構成されているとしてそれぞれをn次元のベクトルP、Q、Nとみなす事にする。

図3はベクトルP、Q、Nの相互關係を平面的に記したものである。ここでベクトルXはQの単位ベクトルであり、ベクトルYはNの単位ベクトルである。

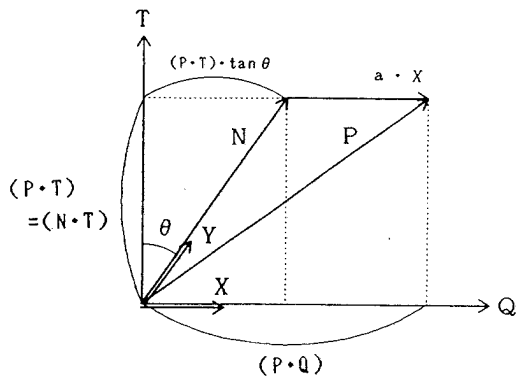


図3 ベクトル図

ここでP、Q、X、Yにおける相互の関係は次式で表記できる。これは分光吸収現象において各ベクトル間には線形な関係がある事を前提にしている。

$$Q = \alpha \cdot X \dots\dots\dots (1)$$

$$P = a \cdot X + b \cdot Y \dots\dots\dots (2)$$

ここで

- α : セルに封入されたターゲットガスの標準とする濃度値。
- a : チャンバー内に存在するターゲットガスの濃度値 (未知)。
- b : 妨害スペクトルの濃度値。

以下、ベクトルの性質を用いてPのなかに含まれるQの割合を求める際にNの影響を排除する方式について説明する。対象とするチャンパー内のガスの吸収スペクトルを多次元空間内でベクトル表現し、主成分分析により部分空間を設計する。その後、相互に直交するベクトルの内積はゼロである事を利用してNの影響を排除しようとするものである。そのためにはNに直交するベクトルを仮定して演算をすすめるのが一般的である。^{1), 2), 3)}

しかしこの研究の究極の目的は大気中の特定のガスの濃度を測定する事にあるので大気中に存在するすべてのガスについてそれぞれの直交ベクトルを設定して計算するという方式は現実的でなくかつ計算に要する時間も多大のものになるであろう事は自明である。

そこで本研究においてはターゲットガスのスペクトルを採取してそのスペクトルを濃度算定のための評価基準とする方式による濃度計算式を開発する方向で検討を進めた。

まずQに直交するベクトルを求めてそれをTとする。またTとXとの内積を(T・X)と表記するとTとXは直交しているので次式が導かれる。

$$(T \cdot X) = 0 \dots\dots\dots (3)$$

(1),(2)式を用いて、PとQの内積を求めると

$$(P \cdot Q) = a \cdot \alpha \cdot (X \cdot X) + \alpha \cdot b \cdot (X \cdot Y)$$

(1)式よりX=Q/αであるから

$$(P \cdot Q) = a \cdot (1/\alpha) \cdot (Q \cdot Q) + b \cdot (Q \cdot Y)$$

これより

$$a = \alpha \cdot \{ (P \cdot Q) - b \cdot (Q \cdot Y) \} / (Q \cdot Q) \dots\dots\dots (4)$$

またPとTの内積を求めると

$$(P \cdot T) = a \cdot (X \cdot T) + b \cdot (Y \cdot T)$$

(3)式より

$$(P \cdot T) = b \cdot (Y \cdot T)$$

よって

$$b = (P \cdot T) / (Y \cdot T) \dots\dots\dots (5)$$

(5)を(4)に代入して

$$a = \alpha \cdot \{ (P \cdot Q) - (P \cdot T) \cdot (Q \cdot Y) / (Y \cdot T) \} / (Q \cdot Q) \dots\dots (6)$$

ここで第3図においてTとYとの角度をθとすると

$$(Q \cdot Y) / (Y \cdot T) = \tan \theta$$

であるから(6)式に代入して

$$a = \alpha \cdot \{ (P \cdot Q) - (P \cdot T) \cdot \tan \theta \} / (Q \cdot Q) \dots\dots\dots (7)$$

(7)式をこの研究の目的である濃度計算式とする。

ここでαは既知の値である。P、Qは測定値である。

TはQから導かれるものである。Yはあらかじめ与えられているものとしているので tanθ は決定される。従って(7)式のベクトル演算によってチャンパー内に存在するターゲットガスの濃度は計算可能である。

IV 数値シミュレーション結果

図4はシミュレーション結果の1例を示す。

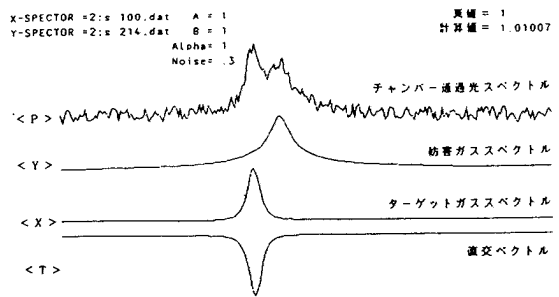


図4 シミュレーション例

シミュレーションのために用いたスペクトルの特性は以下の通りである。

(X) はターゲットガススペクトルQの単位ベクトルである。このシミュレーションにおいては、中心位置を100とした時、高さが1で半値幅がおよそ8の特性を持つも

のと仮定している。実際の大気分析測定時にはベクトルQがそのまま使用される。

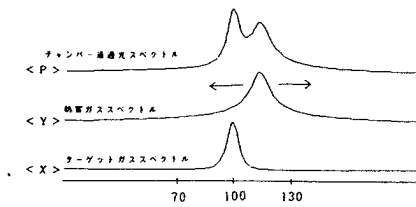
(Y) は妨害スペクトルNの単位ベクトルである。このシミュレーションにおいては、中心位置を100とした時、高さが1で半値幅がおよそ16の特性を持つものと仮定している。実測定時には妨害スペクトルとしてあらかじめ与えられるものである。

(T) はQに直交するベクトルであり、理論上では無限個存在するが、この研究においてはQの形状を利用してソフトウェアで(Q・T)の値が充分ゼロに近づくようにTの各要素をソフトウェア上でループを構成して修正を加えたものを用いている。

(P) は(2)式において係数 a、b を設定して算出されるベクトルPに白色雑音が重畳したものである。この例における白色雑音の強度はPのピーク値を1とした時、0.3の振幅をもつ乱数であり、Pの各要素に加算したものである。ベクトルQは図4には図示されていないが(1)式によって算出される。以上の設定条件によって(7)式を用いて妨害ガススペクトルを含む測定値PからQを比較基準としてターゲットガスの濃度を算出するシミュレーションを行った。

この例ではPに白色雑音が重畳しているが計算値は真値に近い値を出力している。

表1は相対位置の影響を示す。



妨害スペクトルの中心座標	70	80	90	95	100	105	110	120	130
真値からの誤差 (%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0

表1 相対位置の影響

これは、ターゲットスペクトルと妨害スペクトルとの相対位置が濃度計算値へ及ぼす影響を調べたものである。ターゲットスペクトルの中心位置を100とした時、妨害スペクトルの中心位置が70から130までの範囲にある時につ

いて調べた。

妨害スペクトルの位置がどこにあっても濃度計算値への影響はまったく無いという結果を示している。

図5は妨害スペクトル耐性を示す。

真値との誤差 (%)

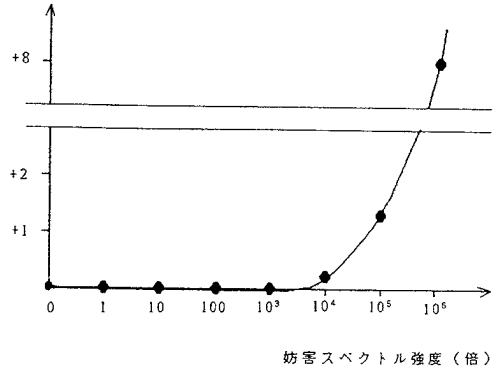


図5 妨害スペクトル耐性

これは、ターゲットスペクトルと妨害スペクトルとの分光吸収レベルの比率が濃度計算に及ぼす影響を調べたものである。ターゲットスペクトルの中心位置を100とした時、妨害スペクトルの中心位置を115に設定した時について調べた結果である。

妨害ガス濃度がターゲットガス濃度の10万倍であっても真値の±1.5%以内の誤差で濃度を算出している。それ以上の領域で誤差が急増しているがそれは計算機の内部誤差に起因するものと思われる。

図6は白色雑音耐性を示す。

真値との誤差 (%)

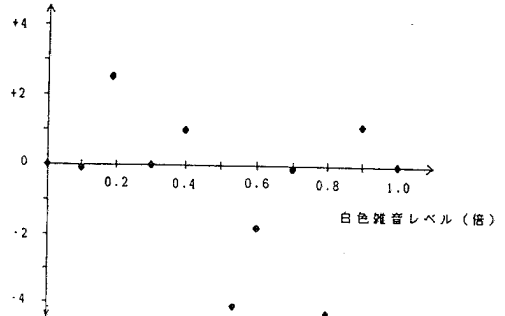


図6 白色雑音耐性

測定値Pに白色雑音が重畳した時に濃度計算に及ぼす影響を調べたものである。シミュレーションの設定条件は以下の通りである。

- ①ターゲットスペクトルの中心位置を100とした時、妨害スペクトルの中心位置を115に設定し、両者が重畳している状態を設定した。
- ②信号強度については、ターゲットスペクトルと妨害スペクトルのピーク値の強度が共に1.0である場合を設定した。
- ③重畳する白色雑音は、(2)式によって算出されるPのピーク値を1とした時、振幅が0.1づつ変化する乱数であり、Pの各要素に加算した。これは図4におけるPの算出と同様の手順である。
- ④重畳する白色雑音の強度が0から1まで0.1づつ増加してPに加算的に重畳されるとき、各々の場合について、(7)式によって算出されたターゲットガス濃度(Cal.)が、真値(True)を基準として何%ずれているか(Error)を評価した。

$$\{\text{Error} = ((\text{True} - \text{Cal.}) / \text{True}) \times 100 (\%) \}$$

図6から、真値との誤差は白色雑音の重畳に大きく影響されていると云えるが、法則性は発見できない。

V 考察

①(7)式において $\tan \theta$ の値が具体的に意味するところは、レーザーが掃引した波長の範囲内における妨害スペクトルとターゲットスペクトルとの相対的な位置関係や吸収線の数などによるスペクトルの形状の相違に関係するものであろうと思われる。

従ってどの波長域に妨害スペクトルがあるかを知ってさえいればチャンパー内に存在するターゲットガスの濃度を測定する際に妨害ガスの存在の影響を受けないという結果を得る事ができるであろうと思われる。

ここでターゲットガスの濃度を求める際に妨害ガスの影響を排除するために必要とされる妨害ガスのスペクトルは形状のみが必要とされておりその絶対値は必要ではないという点が特筆されるべき特徴である。

②(7)式を図3のベクトル図上で検討すれば以下になるであろう。即ち $(P \cdot Q)$ から $(P \cdot T) \cdot \tan \theta$ を引いたものはPベクトルに含まれている $a \cdot X$ ベクトルの

成分のみをQに投影したものとなり、それを $(Q \cdot Q)$ で評価したものが a と a' との比率になるという事である。このような観点からも(7)式の正当性を検証できる。

③Qの直交ベクトルTは理論上無限個存在するという事はこの計算式において何等かの発展性を示唆するものではないかと考えられる。

④この計算式を実用に供する場合には以下の問題点を含んでいる。それは測定値P、Qの波長域に正確に一致させてYを与える必要がある事であって、その事が実装上大きな困難を伴う事が予想される。それは現時点で供給されるレーザー素子の諸特性に起因しており以下に述べる点である。

- ア) 広帯域掃引の時にはモードホップを避けられない。
- イ) 注入電流の供給に関して増加させる場合と減少させる場合では発振波長域にヒステリシス現象がある事。
- ウ) モードホップを発生しない範囲の掃引であってもレーザー素子の発熱等のため注入電流の値に対する発振波長の対応関係が保証されていない。
- エ) 個々のレーザー素子の間で、掃引波長域にばらつきと経年変化がある事。

(Tunable Laser Diodeとして1300nm帯の光通信用モジュールを用いる予定であるが、必要とする詳細な緒元については明示されていない。AlGaAsのLaser Diode (780nm系) では、注入電流変化率は約0.004nm/mA、約300 μm の共振器長でmode hopは約3 \AA である事などを参考とする。)

この不都合を避ける手段として次の2つの方法が考えられる。

ア) ある時点の測定値PをYの代用として用いる。Pにはターゲットガスが含まれているのでその時点を基準とした相対値の測定となりターゲットガス濃度の絶対値測定ができないという新たな不都合を生じる。

イ) 定期的にターゲットガスを含まないガスをメジャリングチャンパーに導入しその時の測定値PをYに代入して $\tan \theta$ を求める。

この方法ならば絶対値測定は可能であるが機械的な煩雑さを伴うという新たな不都合を生ずる。

⑤測定値に白色雑音が重畳した時には個々の計算値にばらつきが発生するのは図3において $b \cdot (Y \cdot T)$ と $(P \cdot T)$ とが一致しなくなるためであり、数回の平均値をとる事で精度の向上を期待できるものと思われる。

⑥直交ベクトルを用いるという事概念は基準とするものからの差を定量するのに適しており、例えば心電図などにおいて標準とする波形と患者の波形との相違を定量する時などに応用できるのではないかと考えられる。

VI 結言

この研究は測定対象ガスの分光吸収スペクトルの近傍かまたは重畳して他のガスの吸収スペクトルが存在する時その影響を排除して常に正確な濃度測定結果を得るための濃度計算式を提案するものである。

測定データをベクトルとして扱い直交するベクトルを仮定する事によって妨害スペクトルの影響を完全に排除する事に成功した。この時濃度計算結果は測定対象ガススペクトルと妨害スペクトルとの相対的位置や相互の分光吸収量に全く影響されない事が確かめられた。

この方式の難点は妨害スペクトルの形状をあらかじめあておく事が必要な点である。

本研究は平成2年度の指定研究で援助を賜りました事を事業団及び関係各位に深謝いたします。

VII 参考文献

- 1) 佐野博也、古賀隆治、小坂 恵：「環境汚染気体の挙動追跡のための半導体レーザー測定システムの実用化研究」 昭和59年10月
 財鉄鋼業環境保全技術開発基金による助成研究。
- 2) 佐野博也、古賀隆治、棚田嘉博：分光研究、27巻(1977) 297.
- 3) H.Sano, R. Koga and M. Kosaka : Japan. J. Appl. Phys., 22 (1983) 1883.