

装置と技術**新方式フーリエ変換分光光度計と環境計測への応用**

V. Tank* · E. Lindermeir* · P. Haschberger*

水谷由宏** · 亀岡 優***

*ドイツ航空宇宙技術研究所 ドイツ, ヴェスリング市 D-82230

**上智大学理工学部物理学科 東京都千代田区紀尾井町7-1 (〒102)

***日本パステック株式会社 光計測研究室 大阪市淀川区西中島6-5-3 (〒532)

(1995年3月16日受理)

A New Type FT-IR Spectrometer and It's Application to the Environmental Research

V. Tank*, E. Lindermeir*, P. Haschberger*

Y. Mizugai**, M. Kameoka***

*Deutsche Forschungsanstalt für Luft-und Raumfahrt (DLR), D-82230 Wessling, Germany

**Department of Physics, Sophia University, Kioi-cho 7, Chiyoda-ku, Tokyo 102

***Nippon Pastec Co., Ltd. Optronics Laboratory, 6-5-3 Nishinakajima, Yodogawa-ku Osaka

(Received March 16, 1995)

Key words: Fourier Transform Spectrometer, Infrared Emission Spectroscopy, Environmental Research

1. はじめに

マイケルソン干渉計を利用したフーリエ分光法は既に種々の分野で利用されている。また、多くの改良、変更が行われてきたが、光路長を変化させるために反射鏡を前後へ駆動する必要がある。この方法は研究室レベルでの制御では問題ないが、悪環境下で利用することを考慮すると、可動ミラーを制御するシステムの設計製作には十分な注意が必要となる。

我々は、反射鏡を前後させる方式でなく、光路長を、反射鏡(プリズム形)の回転を行うことで変動させる新方式マイケルソン干渉計を開発した。このシステムは、従来の干渉計で使用されている反射鏡の直線運動を連続回転運動に置き換えたもので、単純で機械的に強く、高速スキャンが可能な干渉計の設計製作が可能となった。

この高速スキャンマイケルソン干渉計 (Super Photo-

metric Interferometer: SPIN) により、赤外放射分光への遠隔操作による利用が可能となった。赤外スペクトルの定量的な結果を得るために、それぞれ温度の異なる3種類の黒体から成る校正ユニットを開発するとともに、観測データから得られる種々のパラメータを決定する方法も開発した。これらのパラメータとはスペクトルの位置、強度、分光計の放射特性や校正用黒体の温度である。また、校正した後のスペクトルから必要な情報を得るための最適なアルゴリズムも考案した。これにより、例えば大気中や航空機エンジンの排ガスにおける微量成分の濃度やその温度も決定することができる。

最近、屋外、大気中あるいは宇宙空間での環境調査に適した機器の必要性が急速に増加している。単純で機械的振動に強く、しかもメンテナンスの要らない機構が望まれている。この装置を例えば航空機等に積載し、大気中の微量ガス成分の遠隔測定を行うことができる。

そのため、あらかじめ複雑な組成、温度分布を持つ系を解析するためのモデルを開発し、測定に適用するための赤外放射スペクトルのシミュレーションを行った。これは、実測値との差を最小自乗アルゴリズムを用いた校正によってデータ処理するものである。

2. 回転反射鏡によるマイケルソン干渉計

従来のマイケルソン干渉計は片方の平面鏡を前後に平行移動させ、光路長の変動による干渉波を作り出す。この動作は反射鏡の傾き、あるいは移動の均一性といった規則性に対して非常に敏感で、この部分の性能が装置の信頼性を左右する。このために反射鏡の駆動部の設計、製作に大きな労力を必要とする。また、間欠的な運動の必要があって、停止、方向転換および加速中は測定ができないために、スキャン速度およびサイクルに制限がある。また、高分解能測定には大きな光路長差が必要になり、従来の反射鏡速度では長い測定時間が必要である。

1970年後半より可動鏡として直角プリズム反射鏡を用いる設計がおこなわれるようになった¹⁻⁶⁾。この反射鏡は入射光を反射鏡自体の方向とは関係なく平行に反射するので、その傾きあるいは横ずれの補正という点に於いては自己補償機能を持つ。しかし、これらは従来型の走査法のため反射鏡の速度を一定にする工夫および間欠運動による制限が残っていた。

マイケルソン干渉計の新しい設計方式として、我々は従来の反射鏡の間欠運動をプリズム反射鏡の連続回転に置き換えたものを報告してきた^{7,8)}。Fig. 1に示すように、反射鏡を光学軸にたいして平行移動させるのではなく回転させ、その回転軸は光学的に対称な軸自身からずらして配置してある。つまり、干渉計の光学軸に対して常に傾いている。このため、このプリズム反射鏡はニュ

ーテーション運動を行うので、固定鏡に対して光路長を連続的に増加および減少させることができる。干渉計の固定アームにはプリズム反射鏡および直角プリズム鏡の別の面を使った。

ビームスプリッタと平面鏡の各々の面の角度は 45° である。入射光が光路で確実に反射され、系に対する入射および反射光がビームスプリッタの同じ点で確実に交わるようにするため、光学軸は当然ながら Fig. 1に示すように直角プリズム鏡の2つの面に対して垂直になっている。Fig. 2をもとに、各回転角度 ωt に於ける干渉計の光路差を $s(\omega t)$ とすると、片方のアームの光束の無限小の光路変化として導かれる^{7,8)}。また、光軸に対する反射鏡の幾何学的変位 $x(t)$ は、

$$x(t) = l \sin \alpha \cdot \sin \omega t \quad (1)$$

と表すことができる。ここで、

ωt : 時間 t に於ける回転角 (ω = 回転角速度)

α : 回転軸と対称軸のなす角度

l : 回転軸と対称軸の横方向変位

である。

光はこの変位を4回通過する、2回はビームスプリッタから直角プリズム平面鏡まで、2回はビームスプリッタへ戻るときである。従って光路長の変動は

$$s(\omega t) = 4l \sin \alpha \cdot \sin \omega t + s_{off} \quad (2)$$

s_{off} はオフセット値で、幾何学的ゼロ光路差 (Zero Path Difference: ZPD) は、固定光路と、回転角度 $\omega t = 0^\circ$ での回転光路の光路差である。

(2)において最大光路差 s_{max} は反射鏡が半回転の時に得られる。即ち、

$$\begin{aligned} s_{max} &= s(\omega t = 90^\circ) - s(\omega t = 270^\circ) \\ &= 8l \sin \alpha \end{aligned} \quad (3)$$

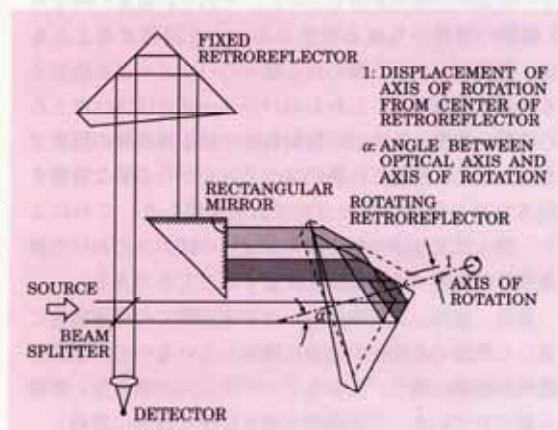


Fig. 1 Interferometer with rotating retroreflector.

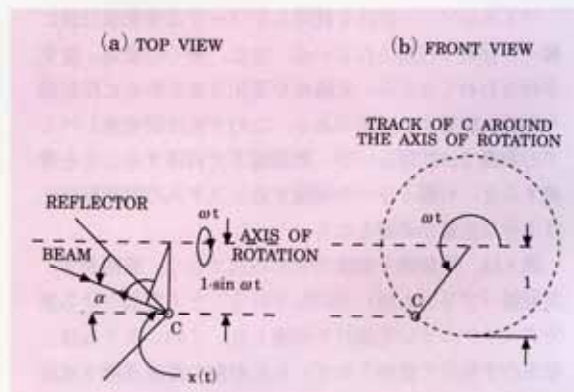


Fig. 2 Determination of the optical path through the retroreflector. (a) top view (b) front view.

従って、光路差は α および l の関数で、反射鏡一回転当り干渉波が 2 回得られることになる。

このようにして光路差を作り出しているが、この光路差は正弦関数で変化する。干渉波のサンプリングはレーザを応用して等間隔の光路増加に応じて行えばよい。他の光学干渉計と同様に、装置を通過するレーザの干渉波がその半波長の奇数倍に等しい光路差において、あらゆる点で強度がゼロになるのを確認する機構である。この参照シグナルは干渉シグナル同様に正弦変調を受けているので、干渉シグナルのサンプリングトリガとして利用できる。具体的な測定方法は第 3 章に詳述する。

干渉波の信号処理系および参照レーザ干渉波の信号処理系は注意を払って可能な限り理想に近い安定な処理システムを構成した。回転運動を行なう反射鏡は、動的バランスを取り、一定速度での回転が可能なので、装置の駆動系には基本的に加速、減速が不要である。この特長は装置が特に希薄大気中、宇宙空間における計測に適しており、遠隔赤外分光として威力を発揮する設計方法であると言える。従来の装置と比較すれば、可動鏡のベアリング、駆動装置および制御装置の設計製作に対する労力が大幅に軽減された。

次に、より高い分解能を得るために、光路長を大きくする技術としてよく用いられるのは、干渉計の両方のアームを逆位相で移動させる方法である。この方法で分光計の分解能は 2 倍になる。これは両方の可動鏡を機械的に適当な方法で運動させればよい。しかし、機械的な運動は実用的でなく、電気的な運動を利用した AT-MOS 干渉計⁹⁾がある。それは、独立した二つの駆動装置を持ち、共通のサーボ制御系によって掃引、制御する

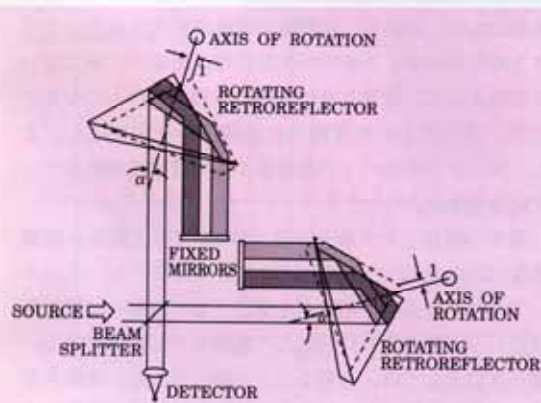


Fig. 3 Interferometer with two rotating retroreflectors. Retroreflectors are driven each by a stepping motor controlled by a common clock.

ものである。

使用方法によっては、共通のクロックでステップモータを動かす方法が可能である。我々の開発した回転反射鏡はこの目的には理想的な装置であり、Fig. 3 に示した。始動点で両方のアーム上の光路が逆位相になるようにとり、モータを同期させて両方の反射鏡をそれぞれのステップモータによって駆動させるシステムである。

分解能は(2)から分かるように、 $\alpha, l, \omega t$ に依存している。通常、これらのパラメータは分解能に合わせて設定されるが、そこまでの分解能が不要であれば、一部分のインターフェログラムをサンプリングすればよい。結果として測定に利用できる時間の一部しか使っていないことになる。

モータは連続運転状態であるために機械的振動は最少限に抑える必要がある。共振や他の振動を減衰させる方法は不可欠で、モータの振動が干渉計の光学部分に伝わらないようにしなければならない。我々は、ステップモータの機械的振動という問題を完全に解消するために、さらに改良を行った。この新しい構成を Fig. 4 に示す。図で分かるように、両方の入射光を一つの回転反射鏡で反射させている。このような光学システムにすることにより、簡単な DC モータを利用することができ、ステップモータに比較して機械的振動は無視できるまでになった。

Fig. 4 で、ビームスプリッタから異なる方向に分かれた光束は、反射鏡によってニュートン運動を行っているプリズム反射鏡に入射させた。光束は 2 つの穴あき反射鏡を通過し、回転軸に対してお互いに反対側から反射鏡に入ることになる。光学軸と回転軸は同一面に配置し、回転軸と一方の光学軸は角度 α 、回転軸と他方の光学軸は $-\alpha$ となる。最初反射鏡に入射した光束は開口付の反射鏡へと進み、鏡に垂直に入射してビームスプリッタに戻る。反射鏡の回転によって光路長の一方は短くなり、またその逆も起きる。従って、反射鏡が一つだけにもかかわらず、光路差も分解能も Fig. 3 の場合と同様になる。

Fig. 1, 3 のような単純な平面鏡の代わりに、穴あきミラーに換えることにより、干渉計の光路差変動のための幾何学的配置が若干ではあるが変更できる。回転反射鏡の中心 C は回転軸に対して円周運動を行っている。Fig. 3 では反射鏡へ光束はこの円周の外側より入射しており、さらに反射鏡から戻るときには光束の楕円軌跡の外側となっている。Fig. 4 では反射鏡への入出力の光束はこの円周内に位置する。従って、ある大きさのプリズ

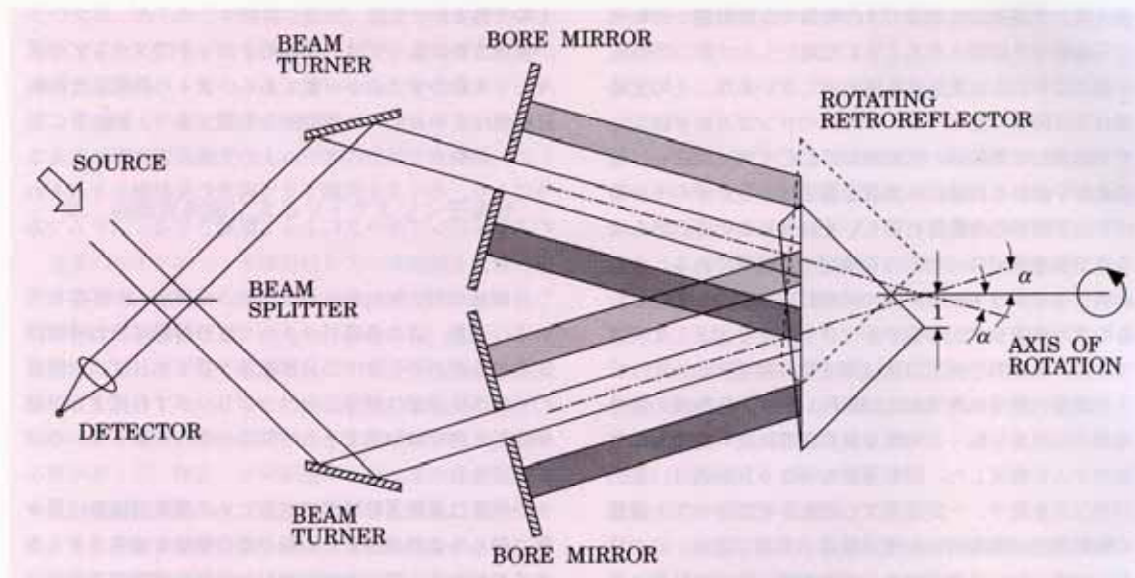


Fig. 4 Combined arms interferometer with single rotating retroreflector.

ム反射鏡に対して、より大きな口径の光束が干渉計を通過することができるので得られる情報量が増す。

この複合アーム方式の干渉計により簡単な機構でより大きな光路差を得ることが可能となる。時間効率を保ちながら分解能を考慮すれば、依然として α あるいは l が分解能を決定している。超高分解能干渉計を設計することは、結果として装置が大型になることになり、ある特定の用途には必要となるであろうが、我々の方式の干渉計では測定時間に余裕がある。あまり分解能が高くてよい場合には、後述するが、この方式の小型装置で回転測定を行う方法が最適である。

3. 測定原理と新しい校正法

3.1 測定原理

Fig. 1, 3, 4 に示した研究室モデルの干渉計は実際に試作器を製作して検討を行った。干渉信号、制御系、データの A/D 変換、標準パソコン用インターフェースの開発、さらにはデータ積算とその評価をするソフト等も開発した¹⁰⁻¹³⁾。

上記の回転型干渉計に関して、まず最も基本的で苦労したのは、回転による光路差の変動が正弦変調となることである。もし、干渉計において光学的な変動の速度を v とすると、光路 s は時間と共に変化する。

$$s(t) = v \cdot t \quad (4)$$

スペクトログラムは波数 σ とすると次の式で電気信号周波数 f に変換される。

$$f(t) = v \cdot \sigma \quad (5)$$

線形に動く干渉計の場合、測定中にサーボ制御ループの光学的速度 v は一定になるから、スペクトル内の各波数 σ は電気信号周波数 f に時間に無関係に変換される。

$$f = v \cdot \sigma \quad (6)$$

干渉波のバンド幅 B は直接計算でき、

$$B = v \cdot (\sigma_{\max} - \sigma_{\min}) \quad (7)$$

干渉計では、動いている鏡の位置を決めたり、インターフェログラムの A/D 変換を行うのに、通常 HeNe レーザの干渉を利用する。HeNe レーザの電気的信号系は反射鏡の速度が一定に保たれる限り、干渉波と同位相の必要はない。しかし、可動鏡の速度が変化すると、スペクトルにゴーストラインが生じたり、速度が一定でないことによって、信号と参照信号の位相が変わってしまうので、スペクトルに変換される関数が一定でなく、また、スペクトルのバンド幅が広がって信頼性のあるデータにならない。

我々の開発した干渉分光計、SPIN では光路長の変動速度は回転角(2)の正弦曲線によって変化する。インターフェログラムは位相変調を受けており、従って電気信号のバンド幅もこれに対応して処理をする必要がある。第一近似としては、必要なバンド幅は最も遅い光路長変動時の最小波数、および最も速い変動時の最大波数によって決定することができる。最低周波数は、光路の方向が転換するとき起こりゼロなので、バンド幅は以下のようなになる。

$$B = v_{\max} \cdot \sigma_{\max} \quad (8)$$

どの FT 分光計についても言えることであるが、比較的大きなバンド幅では S/N が悪くなる。さらに極端に周波数が低い信号は処理ができないので、(8)をそのまま実現できるバンド幅とするわけにはいかない。我々は正弦波形の光路変化に対応しなければならないので、データ取り込みが回転角によって制限されるから、 $-90^\circ \leq \omega t \leq +90^\circ$ に代わって $-60^\circ \leq \omega t \leq +60^\circ$ のデータを取り込むことにした。この場合、最大光路差 s_{\max} の 86.6% (= $\sin 60^\circ$) の干渉波が全回転時間の 33.3% の間に記録される。この制限によりバンド幅はスペクトル分解能の低下が無視できるような範囲となる。当然、調べたい信号と参照用信号の位相や、関連するエレクトロニクスに関しては細心の注意を払った。

以上の結果、Fig. 5 に赤外 HeNe レーザ放射の測定結果および理論曲線との比較を示した。レーザの発振周波数は 2947.9 cm^{-1} で、得られたインターフェログラム (サンプリング回数 64) のフーリエ変換を行った結果を

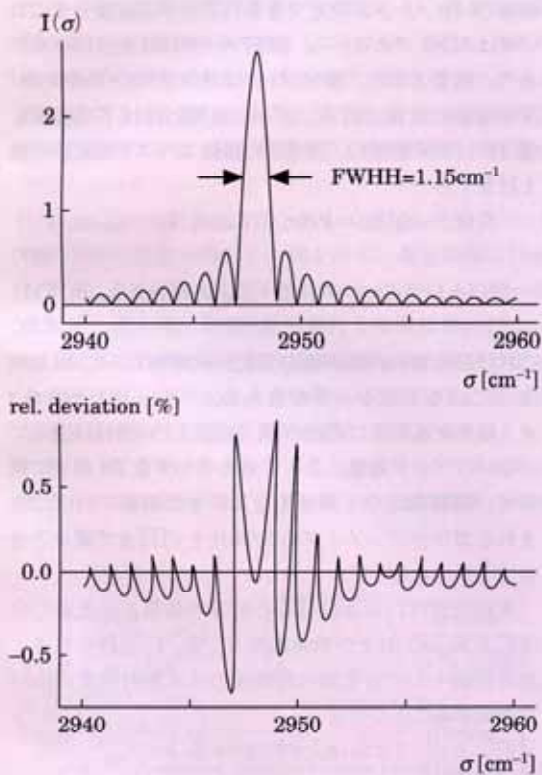


Fig. 5 Instrument line shape function. top: measured spectrum using an IR-HeNe laser as a source. bottom: relative deviation between measurement and calculation.

グラフにした。測定曲線と理想的な正弦曲線との相対誤差は Fig. 5 の下部に示すが $\pm 1\%$ 以下である。

3.2 放射分光の原理と干渉計の校正

赤外領域での発光分光法において、測定される量は分光放射照度 $E(\sigma)$ である。これは単位面積、単位時間当りに表面に入射する分光放射束 $\Phi(\sigma)$ であり受光側に関連して決定される。分光放射輝度 $L(\sigma)$ および分光放射強度 $I(\sigma)$ について、幾何学的にはこれらの数量は共に扱う方が便利と言える。分光放射輝度 $L(\sigma)$ はほとんどの遠隔測定に適用が可能であり、さらにはこれらの数量はお互いに容易に変換できる。従って以下の議論においては分光放射輝度 $L(\sigma)$ を扱う。

今、干渉計から分光計にデータを変換するとき、スペクトル強度についての情報の大切な要素となるが、入出力の関係は分光計の分光応答関数 $R(\sigma)$ による。これは装置に対して適当な放射校正を行うことによって決定できる。このため、我々は安定した再現性のあるしかも既知の光源として黒体発光を利用した。これによる標準校正法について述べ、この新しい方式の利点について議論する。

放射物体からの分光放射輝度 $L_0(\sigma)$ が、干渉分光計で受光される場合、透過媒体の影響が無視できるとして得られるスペクトルは次の式であらわされる。

$$S(\sigma) = R_S(\sigma) \cdot \{L_0(\sigma) + L_S(\sigma)\} \quad (9)$$

ここで、

$S(\sigma)$: 測定されるスペクトル (デジタル値)

$R_S(\sigma)$: 分光計の分光応答, $1/(W/\text{cm}^2\text{srcm}^{-1})$

$L_0(\sigma)$: 測定物体の分光放射輝度, $W/(\text{cm}^2\text{srcm}^{-1})$

$L_S(\sigma)$: 検出器にて検出される分光器内部表面の分光放射輝度, $W/(\text{cm}^2\text{srcm}^{-1})$

これらはすべて波数の関数である。

物体の分光放射輝度 $L_0(\sigma)$ を測定スペクトル $S(\sigma)$ から得るには、分光器の分光応答 $R_S(\sigma)$ および分光器内部表面の分光放射輝度 $L_S(\sigma)$ を知ることが必要である。

$$L_0(\sigma) = S(\sigma) / R_S(\sigma) - L_S(\sigma) \quad (10)$$

得られるスペクトルは不連続スペクトルであり、波数 σ_i に於ける $L_0(\sigma_i)$ の有限数 N を含む。従って校正するには各々の波数においてパラメータを 2 つ定める必要がある。即ち分光器分光応答 $R_S(\sigma_i)$ および分光器内部表面の分光放射輝度 $L_S(\sigma_i)$ である。

表面温度が T_1, T_2 の 2 種類の黒体を利用して既知の放射分光の校正を行う方法は確立されており、各々のスペクトル $R_S(\sigma)$ および $L_S(\sigma)$ は以下のように計算される。

$$S_i(\sigma_i) = R_S(\sigma_i) \cdot \{L_{bb}(\sigma_i, T_1) + L_S(\sigma_i)\} \quad (11)$$

$$S_2(\sigma_i) = R_S(\sigma_i) \cdot \{L_{bb}(\sigma_i, T_2) + L_S(\sigma_i)\} \quad (12)$$

ここに, $i=1 \dots N$

$S_1(\sigma_i)$: 波数 σ_i のスペクトル

$R_S(\sigma_i)$: FT 分光計の分光応答, $1/(W/cm^2 \text{srcm}^{-1})$

$L_S(\sigma_i)$: 分光器内部表面の分光放射輝度,
 $W/(cm^2 \text{srcm}^{-1})$

そして, $L_{bb}(\sigma, T_1)$ および $L_{bb}(\sigma, T_2)$ はそれぞれ温度が T_1 および T_2 の黒体の放射スペクトルで,

$$R_S(\sigma_i) = \frac{S_1(\sigma_i) - S_2(\sigma_i)}{L_{bb}(\sigma_i, T_1) - L_{bb}(\sigma_i, T_2)} \quad (13)$$

$$L_S(\sigma_i) = \frac{S_1(\sigma_i)}{R_S(\sigma_i)} - L_{bb}(\sigma_i, T_1) \quad (14, a)$$

$$L_S(\sigma_i) = \frac{S_2(\sigma_i)}{R_S(\sigma_i)} - L_{bb}(\sigma_i, T_2) \quad (14, b)$$

この方法は黒体の温度 T_1, T_2 が必要で, $L_{bb}(\sigma, T_1), L_{bb}(\sigma, T_2)$ を式(13), (14)においてプランクの式による計算に利用する。

放射校正用の黒体は, 通常電熱ヒータで金属ブロックを加熱するもので, 表面は輻射率を高めるように処理される。温度は熱電対もしくは Pt100 センサーを金属ブロック内に取り付けて測定するが, 放射面である表面温度は誤差が大きいため通常は測らない。特に屋外での計測では表面温度は測定値よりも大きく変動する。このような温度誤差はスペクトル校正の $R_S(\sigma_i)$ および $L_S(\sigma_i)$ にも誤差を生じる。Fig. 6 に次の式で示す相対誤差の影響を示す。

$$\frac{[L_{bb}(\sigma, (T+\Delta T)) - L_{bb}(\sigma, T)]}{L_{bb}(\sigma, T)} \quad (15)$$

スペクトル域 1000 cm^{-1} から 4000 cm^{-1} の間で黒体温度が各々 273 K, 373 K, および 473 K として測定温度誤差 1 K とした場合の結果である。誤差は波数の増加および温度の低下にしたがって大きくなる。Fig. 6 の例では最大誤差 5% となっている。このような誤差は, 測定データの校正の際考慮して温度を決定している。

3.3 複数個の黒体による温度校正

我々は, 黒体表面温度を見積もるときの誤差を避けるために, 新しい校正方法を開発した。この温度を決定するためには黒体の測定スペクトル $S_k(\sigma_i)$ により, 分光器分光応答 $R_S(\sigma_i)$ および分光器内部表面の分光放射輝度 $L_S(\sigma_i)$ を利用して行う¹⁴⁾。

(11) および (12) 式には 2N 個の分光データポイントがあり, $R_S(\sigma_i)$ および $L_S(\sigma_i)$ の 2N の値を計算するには充分である。しかし, T_1, T_2 の他に, 第 3 の黒体の温度 T_3 を得ることができれば, より正確な情報を得ることができる。

$$S_3(\sigma_i) = R_S(\sigma_i) \cdot \{L_{bb}(\sigma_i, T_3) + L_S(\sigma_i)\} \quad (16)$$

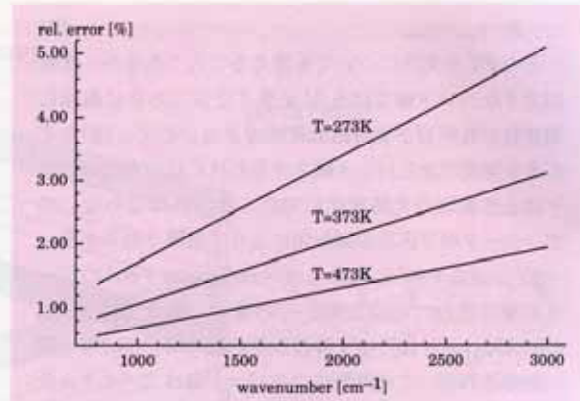


Fig. 6 Relative black body radiance error for erroneous temperatures. Temperature error $\Delta T=1 \text{ K}$; (a); $T=273 \text{ K}$; (b); $T=373 \text{ K}$; (c); $T=473 \text{ K}$.

このとき, 3 個の黒体温度は未定とすれば, $(2N+3)$ 個のパラメータに対して $3N$ 個の独立した分光データが利用できることになる。従って, $N \geq 3$ に対して全ての未知のパラメータが決定できる。フーリエ変換分光においては $N \geq 3$ であるから, 測定データには充分に余裕があり, 結果として, 測定データからのパラメータの S/N が容易に改善される。データ処理には以下の方法を使った。まず最初に, 測定した黒体スペクトル同志の差を計算する。

$$S_1(\sigma_i) - S_2(\sigma_i) = R_S(\sigma_i) \cdot \{L_{bb}(\sigma_i, T_1) - L_{bb}(\sigma_i, T_2)\} \quad (17)$$

$$S_1(\sigma_i) - S_3(\sigma_i) = R_S(\sigma_i) \cdot \{L_{bb}(\sigma_i, T_1) - L_{bb}(\sigma_i, T_3)\} \quad (18)$$

これは分光器の内部表面の分光放射輝度 $L_S(\sigma_i)$ 項を消去している。もう一つの差 $S_2(\sigma_i) - S_3(\sigma_i)$ は上記の 2 式と線形従属関係にあるので, 上記以上の情報は含んでいない。データ処理によって分光データを $2N$ 個まで減らす。黒体測定の干渉分光を 2 倍まで積算すれば, 含まれるガウシアンノイズの S/N 比を $\sqrt{1/2}$ まで減少させることができる。

次に, 式(17)および(18)の計算の結果, 分光器の分光応答 $R_S(\sigma_i)$ および黒体温度 T_1, T_2, T_3 が得られる。第 3 段階として分光器内部表面の分光放射輝度 $L_S(\sigma_i)$ を決定することができる。

$$L_S(\sigma_i) = \frac{1}{3} \left[\frac{S_1(\sigma_i) + S_2(\sigma_i) + S_3(\sigma_i)}{R_S(\sigma_i)} - L_{bb}(\sigma_i, T_1) - L_{bb}(\sigma_i, T_2) - L_{bb}(\sigma_i, T_3) \right] \quad (19)$$

この方法により、校正用黒体温度を別途に測定しなくても全ての未知のパラメータが求められた。勿論、結果として、得られる温度が真の表面温度であり、プランクの放射則に従っている。

3.4 温度校正の比較

Fig. 7 に示した校正ユニットは直径150φの金属製円盤からなり、各々独立したヒータを備えている。温度は半径方向に設けた孔の中に Pt100 センサーを取り付けて測定した。表面には高発光材 3M Black を塗ってあり、それらを水平にかつ回転台を中心に等間隔に配置している。この台を90°ずつ回転させると、4つの黒体とも入射角45°の反射鏡の真下に位置することになり、黒体の放射が反射鏡を介して干渉計に導かれる。水平方向に配置することで黒体表面の温度勾配を0.1 K 以下に抑えている。これにより、従来の温度勾配が2 K 以上あったのに比べ桁以上精度良く、高速で再現性のある校正ができた。

2種類の校正方法を比較するために、4つの光源の分光放射輝度を、検出領域を1900 cm⁻¹~3000 cm⁻¹としてフーリエ変換分光計を用いて測定した。従来は2種類の異なる温度のみで校正していたが、新しい方法では3種類の温度で校正を行うので、測定データから3個の選び方が2通りとることができる。このため両方法の比較だけでなく校正装置そのものの信頼性の評価も可能となった。

Table 1 に、従来の方法と新しく採用した方法で、4つの黒体の温度を測定した例を示す。測定時間は10分以下で、分光応答および干渉計のもつ放射は其间一定と仮定している。Pt100 検出器による温度測定によって、従来の方式では4個の測定結果から6種類の組み合わせが可能となり、各々6種類の分光器分光応答および干渉計自体の分光放射輝度を得た。

新しい方式では各々のスペクトルに対し、150点の分光データを組み合わせる計算を行った。測定温度の利用

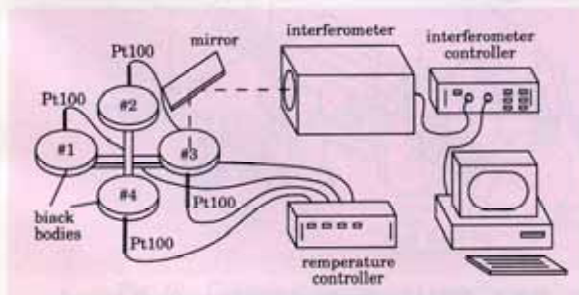


Fig. 7 Interferometer calibration setup.

Table 1 Temperatures of four black bodies (K)

	従来方式の測定温度	新方式による温度
T ₁	476.4	476.56±0.06
T ₂	432.6	431.96±0.16
T ₃	354.6	352.29±0.28
T ₄	393.4	396.45±0.15

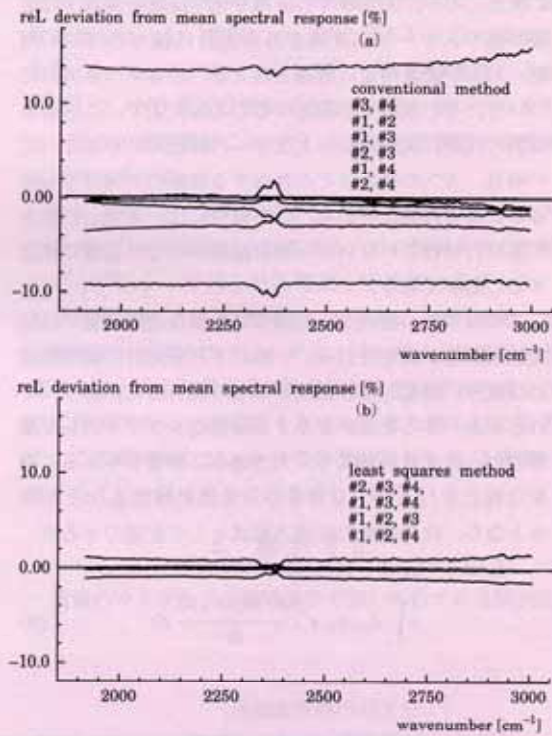


Fig. 8 Relative deviation from the mean spectral response. (a): conventional calibration, (b): combined black body temperature and interferometer calibration.

は各々3個のデータの組み合わせで、各々4種類の分光応答および固有放射を得た。従来方式の6種類の結果は平均分光応答を計算し、その偏差を Fig. 8(a) に、新方式の結果については Fig. 8(b) に示す。

校正に必要な時間内では分光応答および固有放射は大きく変動しないので、その結果にも大きな変動はない。分光応答に関しては、Fig. 8(a), (b) の比較から、新方式では±2%以下、実際には、より小さい偏差で温度が決められるが、従来の方式では10%以上の誤差を考慮しなければならないことが分かる。固有放射に関しても同じような結果になる。このことから、Pt100温度検出器は正しい表面温度を示すのではなく、上述した新方式

による計算によって出した値が、校正された真の表面温度を表していることになる。

4. 環境計測への応用

人工的なガス排出源や、生物などから発生するガスからの放射の影響に関する研究はますます重大な関心事になってきている。排出源におけるガスの汚染度を定量的に決定したり、大気中での分布や化学反応を調査する必要がある。フーリエ変換赤外分光計は種々のガスの同定、および濃度決定に最適と言える。注目すべきガスについて、その放射光を調査することは大切で、このような例の代表に焼却場から大気中への排出ガスがある。この場合、ガスの温度はその存在する前後の大気よりもはるかに高い可能性がある。この場合には、大気との混合がまだ行われていないから放射総量がかかなり正確に決定することができる。

このように、煙突からの排ガスの様な遠隔測定では分光放射輝度が測定される。一般に FT 分光計の測定領域には成分、濃度および温度の事なる混合ガスがあり、それらがあらゆる光源が寄与する複雑なシグナルとして積算され、分光放射輝度や分光透過率に影響を与える。適切な校正を行えば、全背景の分光放射輝度 $L_i(\sigma_i)$ が明らかとなり、次の放射の伝達方程式として記述できる¹⁶⁾。

$$L_i(\sigma_i) = L_b(\sigma_i) \cdot \tau(\sigma_i, a, s) + \int_a^s L_0(\sigma_i, s') \frac{\delta\tau(\sigma_i, s', s)}{\delta s'} ds' \quad (20)$$

ここで、

s : 分光計の測定光路長、

a : 放射光源と分光計の距離、

$L_i(\sigma_i)$: 背景の見かけ上の全分光放射輝度、

$L_b(\sigma_i)$: 光源の背景距離 a に於ける全分光放射輝度、

$L_0(\sigma_i, s')$: 光路 s 上の位置 s' における光源の見かけ上の分光放射輝度、

$\tau(\sigma_i, a, s)$: 距離 a の光路の全透過率、

$\tau(\sigma_i, s', s)$: 光路上の s' から s までの間に渡って計算された平均透過率。

積算は全てのガス層に対して光路に沿って行う。光路 $\tau(\sigma_i, s', s)$ に沿ったガスの透過率は以下の式によって与えられる¹⁷⁾。

$$\tau(\sigma_i, s', s) = \exp\left(-\sum_{g=1}^G \int_{s'}^s K(\sigma, g, p(s), T(s)) \times \frac{dA_g(z)}{dz} dz\right) \quad (21)$$

ここに、

G : 関係するガスの数、

$K(\sigma, g, p(s), T(s))$: ガス g の分光吸光係数

$p(s)$: 光路の圧力

$T(s)$: 光路の温度

$A_g(s)$: 光路に沿ったガスを g の質量

$K(\sigma, g, p(s), T(s))$ はガス g のスペクトル位置 σ における吸収曲線の和として計算できる。これには吸収線の位置や、その形状を決定する圧力や温度の依存性が含まれる。我々は各種ガスに対して、分光学的データが幅広く集められている HITRAN データベースを利用した^{18,19)}。これらのデータは各種光路長、ガス濃度、温度、圧力での放射スペクトルを予想することができるモデルに用いられている²⁰⁾。逆に、測定したスペクトルから温度や圧力および濃度を見積るために開発した最小自乗法プログラムにも利用が可能である。我々は SPIN 分光計を用いて、Fig. 9 のような実験室レベルの放射分光装置を製作し、実際に加熱したセルをいれて校正テストをおこなった。

必要な組成のガス混合物を充填できる温度可変セルで、光路長は約 18 cm である。片方の窓に黒体放射体を設置し、光源のバックグラウンドでの分光放射輝度 $L_b(\sigma_i)$ の代用として使用した。その温度はセル内部のガス温度より低く保たれ、分光器はもう一方の窓側に設置して、バックグラウンドの上に熱いガス混合物の放射スペクトルが入射することになる。測定、校正および評価をしたところで $\Delta\sigma = 0.5 \text{ cm}^{-1}$ のスペクトル分解能が可能であった。

Fig. 10 に実際に行った計測結果の一つを示した。セル中には CO を 929 ppm, N_2O を 479 ppm (分圧から算出) を充填し、温度は 375.9 K に保ちながら、295.9 K

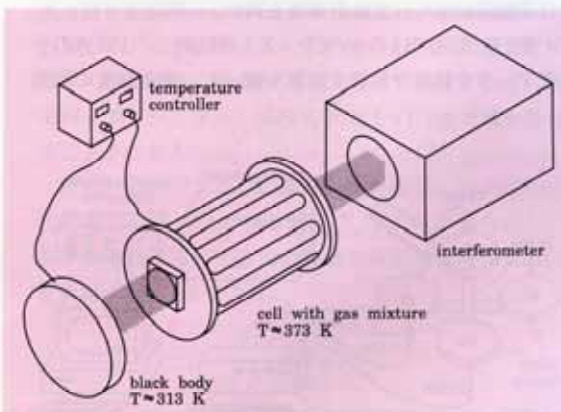


Fig. 9 Setup for emission spectroscopy of heated gas mixtures.

の黒体の前に置いた。Fig. の(a)は2150-2230 cm^{-1} の範囲における分光放射輝度で、濃度と温度を最小自乗法(20)を用いて計算した。同時に低波数領域にはCOの吸収線を、また高波数領域には N_2O の吸収線を上書きしてあるが、 N_2O のスペクトルは完全には分かれておらず2190 cm^{-1} 付近の波数領域では N_2O とCOの吸収線が充分分離できずに重なってしまった。温度や分圧の初期値を任意に選んでも、我々の開発したアルゴリズムによってそれらは自動的に補正され、計算値は最初の測定値と誤差が約 $\pm 3\%$ 以内に収まった。そしてこれらの結果をFASCOD2モデル²⁰⁾に適用すると、ガス混合物の理論放射スペクトルが計算可能となり、Fig. 10(b)に相対偏差をプロットしたが、各波数で実測値と計算値の間には小さな偏差しかなく、低S/N比領域でも偏差は5%以下になっている。

この方法で満足のゆく結果が得られたので、次に航空機のジェットエンジンでの実地計測を行った。このために、DLR マルセルグッソー Falcon 20E 型機を停止状態でエンジンを各種出力で運転した。分光器は照準線をエンジンの1つの噴射口に対して垂直になるような方向で飛行機から30 m 放して置いた。その結果、直径約33 cm のスポットからの放射を受光することができた。バックグラウンドは、排気ロディフレクタシールドで分光反射された冷たい上空の大気からのものである。Fig. 11には測定したスペクトルと計算によって得たス

ペクトルとを同時に示した。Fig. 10と同じように、(a)には測定した放射スペクトルと、測定結果をもとに計算したスペクトルが示してあり、(b)はその相対偏差を示した。1880から1930 cm^{-1} の吸収帯を選び、NO、 H_2O からのスペクトル線が示されている。NOによるスペクトル線は弱いですが、水蒸気からのものとよく分離しており、それぞれ識別することができる。この時、噴気及び噴気と分光器との間の大気の2種のガス相について濃度計算を行った。噴気についてはNOと H_2O の濃度を計算し、フォアグラウンドに関しては H_2O 濃度のみを計算した。NO濃度は検出できないぐらい低いからである。全ての波数領域において、計算値と実測値との偏差は8%以下であった。

これらの計測と計算の結果を、特に航空機から排出されるガスの赤外線放射を計算するために開発された放射モデル²¹⁾によって得られた結果と定性的に比較した。その結果、エンジンの取付方、出力設定、燃料供給、ガス温度圧力と同時にホットガスノズル内のガス濃度を考慮することにより噴気中の赤外線放射をそれぞれの成分ガスに帰属することが可能となった。また得られた結果が、この種のエンジンからの典型的なNO、 H_2O 濃度にきわめて近い値であることを示している。

5. 終わりに

通常のマイケルソン型干渉計で用いられている間欠的

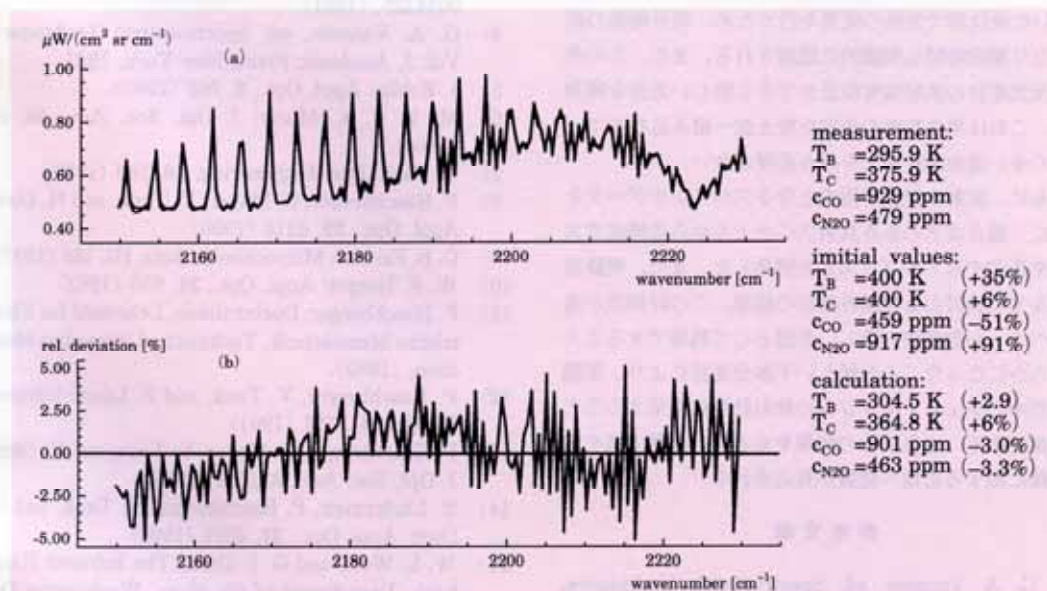


Fig. 10 Calibrated spectrum of heated gas mixture. (a): radiance spectrum of CO and N_2O , (b): relative deviation between measurement and calculation.

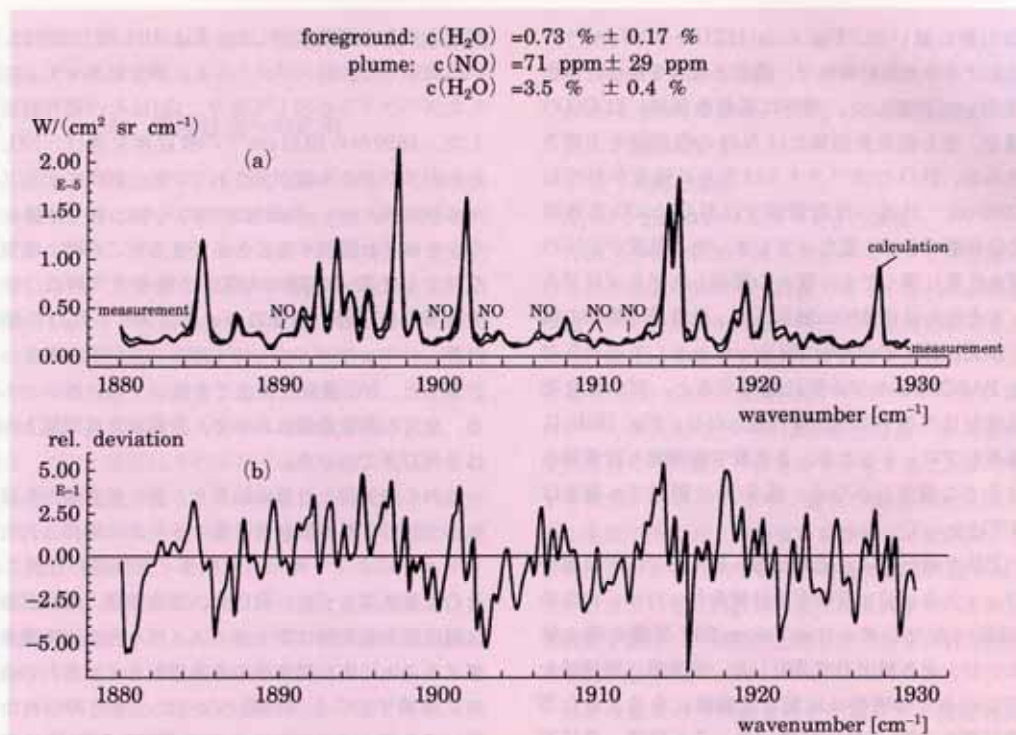


Fig. 11 Calibrated spectrum of jet engine plume. (a): radiance spectrum of NO and H_2O , (b): relative deviation between measurement and calculation.

に前後に動くミラーのかわりに回転反射鏡を用いた新しいフーリエ分光計を開発した。干渉計の2つの反射鏡が互いに逆位相で光路の変更を行うため、高分解能の装置となり測定時間も飛躍的に短縮される。また、この赤外分光光度計の放射強度校正ができる新しい方法を開発した。これは黒体温度の決定を校正法へ組み込むので、誤差の多い追加測定などを行う必要がない。

さらに、放射の伝達方程式と分子スペクトルデータをもとに、混合ガスの赤外放射スペクトルから各構成ガス濃度を決定するアルゴリズムを開発した。また、実験室レベルでの検討および屋外測定の結果、この計測法が遠隔スペクトル測定法の新しい手段として利用できることが明らかになった。この新しい干渉分光計により、実際に飛行中のジェットエンジンの放射計測に使用することが可能である。さらにその結果をもとに、高層大気や気象情報に関する応用へ発展が見込まれる。

参考文献

- 1) G. A. Vanasse, ed: Spectrometric Techniques, Vol. 1, Academic Press, New York, 1977.
- 2) B. Carli, M. Carlotti, F. Mencaraglia, and E. Rossi: Appl. Opt., **26**, 3818 (1987).
- 3) P. Burkert: European Patent Application 0034325, (1981).
- 4) G. A. Vanasse, ed: Spectrometric Techniques, Vol. 2, Academic Press, New York, 1981.
- 5) J. Rohlin: Appl. Opt., **2**, 762 (1963).
- 6) M. V. R. K. Murty: J. Opt. Soc. Am., **50**, 83 (1960).
- 7) V. Tank: Opt. Engineering, **28**, 188 (1989).
- 8) P. Haschberger, O. Mayer, V. Tank, and H. Dietl: Appl. Opt., **29**, 4216 (1990).
- 9) C. B. Farmer: Mikrochimica Acta, III, 189 (1987).
- 10) W. F. Herget: Appl. Opt., **21**, 635 (1982).
- 11) P. Haschberger: Doctor thesis, Lehrstuhl für Elektrische Messtechnik, Technische Universität München, (1992).
- 12) P. Haschberger, V. Tank, and F. Lanzl: Infrared Physics, **31**, 351 (1991).
- 13) P. Haschberger, O. Mayer, V. Tank, and H. Dietl: J. Opt. Soc. Am., **8**, 1991 (1991).
- 14) E. Lindermeir, P. Haschberger, V. Tank, and H. Dietl: Appl. Opt., **31**, 4527 (1992).
- 15) W. L. Wolfe and G. J. Zissis: The Infrared Handbook, Department of the Navy, Washington DC, 1987.
- 16) K. Beier: Deutsche Forschungsanstalt für Luftund

- Raumfahrt, IB552-92/2, 1992.
- 17) T. V. Clarman: Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 4698, (1990).
 - 18) L. S. Rothman, A. Goldman, J. R. Gillis, R. R. Gamache, H. M. Pickett, R. L. Poynter, N. Husson, and A. Chedin: 'AFGL' trace gas compilation, 1982 version, *Appl. Opt.*, **22**, 1616 (1983).
 - 19) L. S. Rothman, R. R. Gamache, A. Goldman, L. R. Brown, R. A. Toth, H. M. Pickett, R. L. Poynter, J. M. Flaud, C. Camy-Peyret, A. Barbe, N. Husson, C. P. Rinsland, and M. A. H. Smith: The HITRAN data base, 1986 edition, *Appl. Opt.*, **26**, 4058 (1987).
 - 20) S. A. Clough, F. X. Kneizys, E. P. Shettle, and G. P. Anderson: Proc. 6th Conference on Atmospheric Radiation, Williamsburg, 1986.
 - 21) K. Beier: Proc. Infrared Technology XIV, SPIE **972**, 363 (1988).