

氏名	猪股英行
授与学位	博士（工学）
学位授与年月日	平成4年3月18日
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第2項
最終学歴	昭和42年3月 東北大学大学院理学研究科物理学専攻 修士課程修了
学位論文題目	大気汚染ガス測定用二波長同時発振レーザー光源の研究
論文審査委員	東北大学教授 稲場 文男    東北大学教授 小野 昭一 東北大学教授 水野 皓司

## 論文内容要旨

本研究の大きな目的は、大気汚染ガスの中でも酸性降雨等をもたらす元凶として地球環境に大きな影響を及ぼしている  $\text{NO}_2$  と  $\text{SO}_2$  を対象に、それらの大気中の濃度計測を可能とする測定システムを開発することにある。測定方式としては差分吸収方式が最も適しており、その光源に用いるレーザー装置は、着目する汚染ガスの吸収断面積の差が可能な限り大きな二波長を発振できる必要がある。また、送信したレーザー光が伝搬する大気の透過率、レーザー光を送信点に戻す役割を果たす散乱体等を含めた測定システム全体の波長依存性に起因する測定誤差を抑えるためには、上記二波長を可能な限り近接して選ぶ必要があり、さらに、測定中の大気の透過率等の時間変動に起因する測定誤差を抑えるためには上記二波長における測定の時間差を可能な限り小さくする必要がある。本論文は、これらの要請を理想的に満たす、任意に近接した二波長での発振が同時に得られるレーザー光源の開発を中心に、その光源を測定システムに組み込んで実施した試験観測の結果からその有用性が検証されたこと等を記述している。以下に、各章の要旨を述べる。

第2章では、レーザーによる測定的一般原理から出発し、大気中の物質の計測に利用可能な光と物質の相互作用を調べ、大気中の微量成分の計測には相互作用の断面積が大きな吸収過程を利用するのが適していることを述べ、なかでも、対象とする汚染ガスの吸収スペクトルの構造に着目して、吸収の最大値を与える波長  $\lambda_1$  と極小値を与える波長  $\lambda_2$  の近接した二波長での測定を行う差分吸収方式が種々の波長依存性を除去できる点で優れていることを示した。

また、本方式は、散乱体に大気中の微粒子を用いることによって距離分解を持った測定を可能と

する DIAL (Differential Absorption Lidar) 法, 及び, 散乱体に反射率の高い固定の反射板等を用いることによって低濃度の測定を可能とする長光路法に適用できるので, それぞれの方法について, 測定した受信電力値から対象とする汚染ガスの濃度を求める詳細な式を導出し, 本方式を適用する上で重要なそれぞれ三つの条件を明らかにした。差分吸収方式による測定の特徴は, これら三つの条件を満たす場合に, 測定区間内に分布する大気汚染ガスの平均濃度が二波長における受信電力の比の値から求められることである。

次に,  $\text{NO}_2$  及び  $\text{SO}_2$  を計測するのに適した二波長の領域及び波長差を調べ,  $\text{NO}_2$  については 450nm 付近の,  $\text{SO}_2$  については 300nm 付近のそれぞれ 1.5nm 程度以内に近接した二波長を用いること, また, 測定時間内の大気状態の変動による測定誤差を抑えるために, 二波長での測定を同時に行うことの重要性を指摘した。二波長での測定を同時に行うには, それぞれの波長での発振する二台のレーザの同期をとって光源に用いることも可能であるが何と言っても装置が大型化すること等から, 本研究では, 物理的にも興味深い, 一台のレーザでビームが重なった所要の二波長を同時に発振させる方法を取り上げることとした。

さらに, 差分吸収方式による測定システムの動作を詳細に検討し, 通常的环境濃度にある  $\text{NO}_2$  や  $\text{SO}_2$  の計測に要求される二波長における受信電力の比の値の測定精度, それぞれの波長の送信電力の見積等を行い, 第 3 章以降でのシステムの設計・製作に必要な指針を得た。

第 3 章では, 可視域の差分吸収用光源に用いることを念頭に, 二波長同時発振色素レーザの方式として提案されている例を調べた。その結果, 多くの方式では二波長の差が 2 nm 程度以内になると急激に発振が不安定になり, 利得が高い方の一波長のみ発振に移行してしまうことが判明した。本研究では, 第 2 章での検討を基に, 1.5nm 程度に近接した二波長の同時発振を安定に得るために, 共振器中の輻射場を互いに直交する二つの偏波成分に分離してそれぞれに波長選択素子を配する方式の色素レーザシステムに着目することとした。図 1 に示した構成の実験システムを用いて詳細な測定を行い, 近接した任意の二波長でスペクトルの点でも出力の点でも安定性の高い同時発振が得られることを実験と理論 (本構成による二波長同時発振を記述するレート方程式の準定常解による) の両面から明らかにした。

一般に, 色素分子が励起電子準位内の非輻射遷移時間が短い ( $10^{-12} \sim 10^{-13}$  s) ことが色素媒体のスペクトルの均一な広がり (Homogeneous Broadening) をもたらし, 通常的方式の二波長同時発振システムにおける近接二波長の発振を不安定にするが, 本方式では, 発振に寄与する色素分子の緩和時間が上記の非輻射遷移時間よりも長い現象 (方向緩和 (Orientation Relaxation), その緩和時間は  $\sim 10^{-10}$  s と判明) を積極的に利用したことによって, 波長差の如何に依らず, それぞれの波長 (偏波) 成分の発振に独立性を持たせることができたものである。

第 4 章では,  $\text{SO}_2$  の差分吸収用の光源に用いることを念頭に開発した, 紫外域二波長同時発振光源の構成及び動作特性を述べた。色素レーザを用いて, まず, 600nm 付近の二波長 (基本波) を発振させ, 次に, 非線形光学結晶を用いてそれぞれの第 2 高調波を発生させる手法を採るが, 二本の基本波の波長差は 2 nm よりも大きくて良いことから, 基本波発生部の構成は第 3 章で述べた構成とは異なり, 通常のスプリッターを用いて共振器を二つのビームに分け, 二本の基本波を同

一の偏波で発振させる方式とした。

二本の基本波を得るには通常2個の波長選択素子を用いるが、ここでは1個の回折格子でその機能を達成したこと、また、二本の基本波を第2高周波に変換するには通常2個の非線形光学結晶を用いるが、ここでは1個のKDP結晶でその機能を達成した(二本の基本波の偏波が同一であることが必要)こと等が大きな特徴である。これらの工夫によって光源の構成がコンパクトになり、第5章で述べる既存の測定システムへの組み込みが容易に行えることになった。

第5章では、光源に、第3章及び第4章に記述した方式による二波長同時発振レーザを組み込んで試作した、差分吸収方式による測定システムの特徴を述べ、また、長光路法についての試験測定として、NO<sub>2</sub>やSO<sub>2</sub>の汚染ガスのサンプルに既知濃度の標準セルを用い、送信したレーザ光の散乱体に100m程度離れたところにある固定の反射体を用いて行った結果を述べた。その中で、NO<sub>2</sub>について取得した二波長同時測定の時系列データを基に、二波長同時測定によって得られる受信電力の比の値の標準偏差値と二波長交互測定によって得られるそれとの比較を行い(表1参照。表中、M及びσは二波長における受信電力の比の値の平均値及び標準偏差値である。)、期待どおり前者が後者に較べて優れた結果を与えることを示した。これにより、二波長交互測定に伴うその間の気象状態の変動から生じる測定誤差を、二波長における測定を同時に行う本方式によって除去できることが明らかになった。

表1からわかるように、本測定システムが可能とする二波長同時測定によってレーザショット毎に得られる二波長の受信電力の比の値の測定精度は2%程度であり、さらにこれらの4ショットについての平均値を用いる場合の測定精度は、本研究の開発目標とした1%を上回っている。このことは、本システムを用いて光路長100mでの測定を行えば0.1ppmの平均濃度のNO<sub>2</sub>を、また、1kmの光路長で行えば0.01ppmのNO<sub>2</sub>を計測できることを意味しており、環境濃度の測定システムとしてほぼ十分な能力を有していることを示している。(NO<sub>2</sub>環境基準濃度は、一日の平均値が0.06ppm以下と定められている)。

SO<sub>2</sub>については、試作した測定システムの受信光学系の制約から二波長の受信信号を同時に処理したデータは取得されていないが、それぞれの波長で得られた受信データの測定精度から見て、NO<sub>2</sub>の場合と同様の二波長信号同時処理システムを用いて測定すればNO<sub>2</sub>の場合と同様の測定精度が得られているものと考えられる。

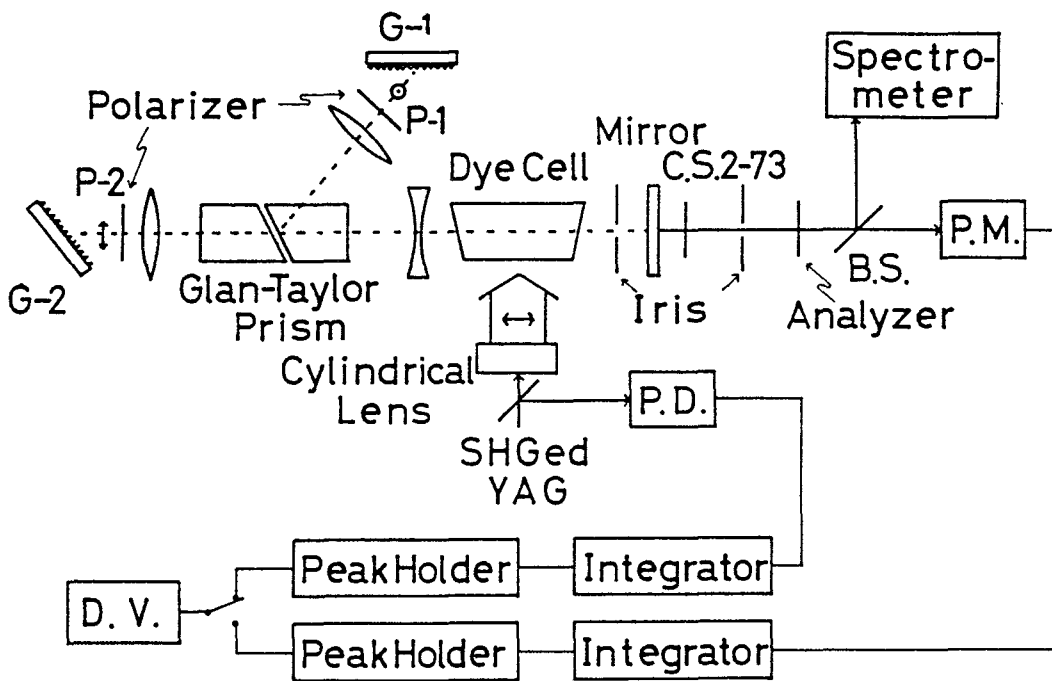


図1. 可視域二波長同時発振色素レーザの共振器構成と測定系

NO <sub>2</sub> 無し		NO <sub>2</sub> 有り		データ処理モード
平均値	標準偏差値	平均値	標準偏差値	
M(c)=0.897	$\sigma(c)=0.016$	M(f)=0.940	$\sigma(f)=0.022$	1ショット同時
M(c')=0.897	$\sigma(c')=0.036$	M(f')=0.941	$\sigma(f')=0.030$	1ショット交互
M(c'')=0.896	$\sigma(c'')=0.007$	M(f'')=0.936	$\sigma(f'')=0.004$	4ショット同時
M(c''')=0.898	$\sigma(c''')=0.010$	M(f''')=0.937	$\sigma(f''')=0.025$	4ショット交互

表1. 二波長同時測定と二波長交互測定による測定精度の比較

## 審査結果の要旨

大気汚染は地球をとりまく安全な生活環境を破壊する要素の一つとして、その防止、抑制は世界的な緊急課題となっている。大気汚染ガスを遠隔的に実時間計測するために各種の測定法が開発、実用化されているが、近年レーザを用いた差分吸収法が高く評価されている。著者はこの計測法の測定精度と安定度を向上するために、一台のレーザ光源で所要の2波長を同時に、しかも同一光軸上で発振することの可能な方法を考案し、実際にNO<sub>2</sub>およびSO<sub>2</sub>測定用の可変波長レーザの試作開発を行い、実用性を有することを明らかにしてきた。本論文はその成果をとりまとめたもので、全編6章よりなる。

第1章は総論である。第2章では、レーザを利用した大気汚染ガス測定方式の比較検討を行い、所要の低濃度汚染ガスの定量的測定には長光路差分吸収方式が感度の点で優れていることを論じている。

第3章では、NO<sub>2</sub>の差分吸収計測には、450nm付近の2nm程度離れた2波長を使用することが最適であり、そのための同時発振を実現する方法として、レーザ光を直交する2つの偏波成分に分離する方式を新たに提案し、理論的解析を行い、さらに実際にこの方式の色素レーザの試作開発に成功している。これは実用上有用な成果である。

第4章では、さらにSO<sub>2</sub>ガスの差分吸収計測に必要な300nm付近の波長域で1.5nm離れた2波長同時発振を得るために、色素レーザによって600nm付近の基本波の同時発振を行い、その2波長を1個の非線形光学結晶によって通倍する方式のレーザシステムの試作研究を行っている。

第5章は、前2章で得られたNO<sub>2</sub>およびSO<sub>2</sub>ガス測定用のレーザシステムがそれぞれ長光路差分吸収計測に適した性能を有することをモデル実験を行って確認した結果を記述したものである。

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、大気汚染ガスの遠隔的差分吸収計測において有用な高性能の2波長同時発振レーザ光源を、可視域および紫外域において試作開発するための研究を行いくつかの重要な知見を得たものであって、電子工学ならびに光エレクトロニクスの発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。