

氏 名	あさ い かず ひろ 浅 井 和 弘
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和54年2月7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43年3月 東京電機大学工学部通信工学科卒業
学位論文題目	赤外域レーザー差分吸収法による大気中オゾンの遠隔測定に関する研究
論文審査委員	東北大学教授 稲場 文男 東北大学教授 虫明 康人 東北大学教授 高橋 正 東北大学教授 柴田 幸男

## 論 文 内 容 要 旨

### 第1章 総 論

オゾンは、太陽から放射される強力な紫外線を吸収して地球上の生物の生存を維持する働きを受け持ったり、気象学的には地球の熱収支を保持する役割を果し、我々人類や生物にとってなくてはならない気体分子であるが、逆に、人間の生産交流活動の活発化に伴ない大都市や工業地帯での光化学スモッグで代表される様な大気汚染を引き起す原因物質の一つとして考えられている。特に、大気汚染は、局所的には人類や生物にとって有害な環境を作り出すだけでなく、長い目で見れば地球全体のスケールでの気候の変化や環境破壊の問題をも含んでいる為、近年先進工業国の間では精力的にオゾンを含む大気汚染物質の監視、制御に対する研究開発が行われている。

現在までに実用化されている大気中のオゾンの検出、測定法は、主に測定地点での濃度の情報しか得ることが出来ない化学的手法を用いたポイント・サンプリング法が主体である。この方法は、オゾンを含む大気の収集作業に付随して生じる導入部、分析系でのオゾンの吸着や他ガスの妨害を受け易い等の大きな問題点を残しているとともに、広域にわたるオゾン測定に際しては多数の測定器を設置しなければならず、これに伴って多人数の機器の保守人員が実際上の問題となっている。

本研究は、大気中のオゾン濃度の監視の社会的重要性の認識の下に、この様な現状を大きく改善する具体的方策を明らかにする為に、レーザーを用いた大気汚染物質の遠隔測定法の一方法とし

てCO<sub>2</sub> レーザを用いる長光路差分吸収法による大気中のオゾン濃度測定法について、この方式の基本的解析にもとづく検討とこの測定法の実用化に臨んで注意しなければならない基本的な諸問題の解明を目的として行ったものである。

## 第2章 オゾン分子の赤外吸収スペクトルの基本的考察

本章においては、オゾン分子の赤外域におけるν<sub>3</sub> 基本吸収バンド内の吸収線の波長を解析的に求め、CO<sub>2</sub> レーザの00<sup>0</sup>1-02<sup>0</sup>0 遷移のPブランチにおけるそれぞれの発振線とのスペクトル的一致について考察を行った。その結果、大気圧の下での衝突による吸収線の線幅は、0.2～0.3 cm<sup>-1</sup> 程度に広がっており、しかもオゾン分子の非対称型構造に起因して生ずる吸収線の数が多い為、CO<sub>2</sub> レーザのP(14)～P(34)の発振線において数多くのスペクトル的一致が得られることが明らかになった。従って、大気中オゾンの検出には、この様なCO<sub>2</sub> レーザの発振線を用い、それらの吸収を測定することにより可能であることがわかった。

## 第3章 CO<sub>2</sub> レーザを用いたオゾン分子の赤外吸収スペクトルの測定

前章で得られたオゾンの吸収線とCO<sub>2</sub> レーザの発振線とのスペクトル的一致に関する考察の実験的な検討を行う為に、純粋オゾン発生装置の試作から着手して、得られたオゾンを使用して、分光学的測定を行った結果について明らかにした。この結果、圧力8 Torr以下のドップラー幅領域においては、CO<sub>2</sub> レーザのP(14)とP(16)の発振線のみが吸収効果を示したが、大気圧下の衝突幅拡がりの領域においては、CO<sub>2</sub> レーザのP(14)～P(36)発振線全てが、吸収を受けることが確認された。

Fig. 1は、周波数が±0.25 cm<sup>-1</sup>以内でレーザ線と一致する吸収線に対し、それぞれの吸収の相対強度を加えさせた計算値と実験値との比較を示す。この図が示す様に、前章の理論的考察と実験結果とは良い一致を与えることが判明した。

さらに、例えば、P(14)発振線に対する吸収係数の値として12.0 cm<sup>-1</sup>・atm<sup>-1</sup>が得られたが、この値は他の研究者によって報告された測定結果とも良く合っていることが確認された。

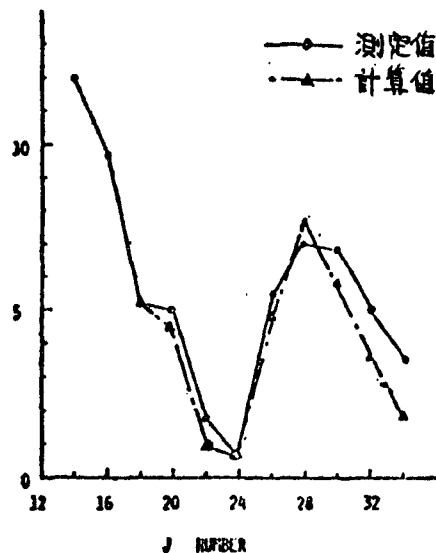


Fig. 1 CO<sub>2</sub> レーザの各発振線に対する吸収係数の測定結果の計算値との比較

## 第4章 レーザを用いる差分吸収法と大気中オゾン濃度の測定への応用

第4章では、大気中の微量オゾン濃度の測定法としてCO<sub>2</sub>レーザを光源とする長光路差分吸収法について基本的検討を行うとともに、他方式との比較検討を試みた。その結果、レーザを用いる差分吸収法の測定誤差は、吸収波長とそれから少し離れた吸収のない波長の二波長の注意深い選択と二波長発振レーザの安定化と高性能化により十分小さく出来ることが明らかになった。オゾン測定用CO<sub>2</sub>レーザの二波長としては、大気中における他のガス（とくに水蒸気）の干渉を最も受けにくいP(14)とP(24)の発振線が最適であることが結論された。また、光路長1kmとすると安定度が1%程度の測定信号処理系では、約4ppbという低濃度オゾンの検出が、出力1mW程度のcw CO<sub>2</sub>レーザあるいはピーク出力0.3Kw程度のパルス発振CO<sub>2</sub>レーザを使用して実現可能であることが導かれた。さらに、従来からの、または現在研究開発中の他の方式と比較して、本方式は装置構成が簡単であり、光源としてのCO<sub>2</sub>レーザも現在の技術水準のもので十分である等、実用上多大のメリットを有していることが明らかにされた。

## 第5章 差分吸収方式による大気中オゾン測定のための二波長発振

### CO<sub>2</sub>レーザの設計および試作

差分吸収方式を実現するため要となる二波長発振レーザについて、まず現在提案されている各種の方式の比較検討から出発し、今までの方式では得ることの出来ない幾つかの長所をもつオフリトロ型二波長発振法を提案するとともに、大気中オゾン濃度の測定の為の差分吸収方式用二波長発振CO<sub>2</sub>レーザの設計、試作を行った。提案したオフリトロ型発振法の特長を、基本的考察ならびにCO<sub>2</sub>レーザについて行った設計、試作結果にもとづいてまとめてみると、1)共振器自体が、機械的動作を必要としないので、周波数安定性と波長切換え後の再現性に優れている、2)二波長の交互発振とともに同時発振も可能、3)適当な回折格子の選択により、どの様な波長領域においてもこの方式が適用できる、4)二波長に限らず多波長発振も可能である。従って、ここで提案、試作した発振法は、差分吸収法の光源として有用なだけでなく、レーザ分光学への応用や非線形効果を用いる和および差周波発生用光源としても実用性を備えていることが明らかとなった。

## 第6章 CO<sub>2</sub>レーザを用いるオゾン検出装置の試作と大気中オゾン濃度の測定

第6章は、第2章から第5章までに得られた考察と実験結果にもとづいて、CO<sub>2</sub>レーザを用いる大気中オゾン濃度検出装置の設計、試作を行い、この装置の動作特性を明らかにするとともに、野外実験における測定結果をまとめて述べたものである。

Fig. 2は、設計、試作したCO<sub>2</sub>レーザを用いる大気中オゾン濃度の検出装置のブロック図を示す。(a)は送受信光学系、(b)は信号処理系をそれぞれ示している。



の最小測定可能濃度を小さくすることが可能となり、6ヶ月の測定期間中30～50 ppbの濃度値まで測定することが出来た。

Fig. 3は、大気中オゾン濃度の測定結果である。(a)は、即存の化学発光法のオゾン計上の測定値との比較、(b)は測定地点に比較的近い東京都の大気監視施設における測定データとの比較をそれぞれ示す。この結果、全般的に非常に良い一致の得られることが認められると同時に、本論文で明らかにしたCO<sub>2</sub>レーザによる長光路差分吸収法を用いる大気中オゾン濃度の遠隔測定法の有用性を実証するものと考えられた。

## 第7章 結 論

本研究では、まず9  $\mu\text{m}$ 帯CO<sub>2</sub>レーザの発振線とオゾン分子の $\nu_3$ 基本吸収バンド内の吸収線のスペクトル的一致について検討を行い、CO<sub>2</sub>レーザのP(14)～P(34)の発振線において多くのスペクトル的一致が得られることを示した。

続いて、純粋オゾン発生装置を試作しこの装置を使って得られたオゾンを用い、実験的にCO<sub>2</sub>レーザ発振線とのスペクトル的一致の検討を行い、理論的考察の正しさを実証できた。これらの基礎的解析および検討をもとに、大気中のオゾン濃度の遠隔測定法としてCO<sub>2</sub>レーザを用いる長光路差分吸収法を提案し、この方式に対する基本的検討を行うとともに、他方式との比較検討を試み、差分吸収法の測定誤差は、使用する二波長の注意深い選択と二波長発振レーザの安定化と高性能化により十分小さくできることを明らかにし、オゾン測定用のCO<sub>2</sub>レーザの二波長としてP(14)とP(24)の発振線が最適であることを導いた。

さらに、差分吸収方式を実現するために必要な二波長発振レーザについて、従来からの方式の比較検討を行い、新たにオゾン測定用のオフリトロ型発振法を提案し、基本的考察を行うとともにCO<sub>2</sub>レーザの設計、試作を行い、基礎的な動作特性を明らかにしその有用性を確認した。これら得られた考察と実験結果にもとづいて、CO<sub>2</sub>レーザを用いる大気中オゾン濃度検出装置の設計試作を行い、この装置の動作特性を明らかにするとともに、野外実験における種々の測定結果と従来からの測定器上での結果との定量的比較、検討を行い、本装置が大気中オゾン濃度の検出装置として優れた性能を備え、かつ十分な有用性および実用性を有することを明確にした。

## 審査結果の要旨

大気中のオゾンは地球全体のスケールでの気候変化や局所的な環境汚染にかかわる重要な分子として、近年世界的に注目されている。しかし、現在実用されている大気中オゾンの検出測定法は一地点でのポイントサンプリングによるもので、収集法や精度、測定時間などに関して問題点があり、広域にわたる実時間の遠隔測定法の開発が強く望まれていた。

本研究はこのような課題に新たに取組んだもので、著者は赤外域 CO<sub>2</sub> レーザの発振線の一部がオゾンの吸収スペクトルと一致することを見出し、装置の設計、試作を行って、長光路にわたるレーザ光の吸収量の精密な計測によってオゾン濃度の遠隔測定が可能であることを明らかにした。本論文はその成果をとりまとめたもので、全編7章よりなる。

第1章は総論である。第2章では、オゾン分子の赤外域の  $\nu_3$  基本吸収バンド内のスペクトルが、CO<sub>2</sub> レーザの 9.6  $\mu\text{m}$  帯の発振線の一部と合致することを理論的に明らかにし、その基本的な分光特性を論じて、本測定法の物理的基礎を明確にしている。

第3章では、前章で導かれた解析の結果を実証するために定量的実験を試み、その間に良好な一致を見出すと共に、レーザ光による各スペクトル線の吸収係数の詳細なデータを得ており、これらは有用な結果である。

第4章では、大気中の微量オゾン濃度の遠隔測定法として、CO<sub>2</sub> レーザを利用する長光路差分吸収方式について基本的検討を進め、吸収波長とそれに近接する吸収の少ない波長の二波長発振レーザの実現とその高性能化によって、本方式が実用上十分な測定精度を実現しうることを明らかにしている。

第5章は、前章で要求された性能を有する二波長発振 CO<sub>2</sub> レーザとして、オフリド型発振法を新たに提案し、その設計、試作を行って、基本的特性を解明した結果をとりまとめたもので、その成果は高く評価される。

第6章では、このような CO<sub>2</sub> レーザを発振器として使用する大気中の微量オゾン濃度の遠隔測定装置を実際に試作し、長期にわたる室内および野外での実験を通じて、その動作特性を究明すると共に、近隣の地方自治体の公害監視施設における測定データとの比較検討を行って、本測定法が実用上極めて有用であることを実証している。

第7章は結論である。

以上要するに、本論文は赤外域 CO<sub>2</sub> レーザを利用して大気中オゾン濃度の実時間遠隔計測を行う高性能の長光路差分吸収測定装置を新たに開発し、その設計、試作に必要な豊富な資料を提供すると共に、その実用性を実験的に明らかにして、いくつかの重要な知見を加えたものであって、電子工学ならびにレーザ工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。