

## 赤外線半導体レーザーによる大気環境測定

梅野正義・延原裕之\*

共通講座教室

(1980年9月1日受理)

## Measurements of Atmospheric Environment by Infrared Semiconductor Lasers

Masayoshi UMENO and Hiroyuki NOBUHARA\*

Department of Engineering Sciences

(Received September 1, 1980)

A minimum detectable concentration of gaseous pollutant molecules was estimated in the Differential Absorption Lidar System using infrared semiconductor pulse lasers and detectors with a boxcar integrator. In the case of  $\text{NO}_2$ , the minimum detectable concentration of 0.01 ppm was obtained for the integration time of 5 seconds in the system of a  $6.2 \mu\text{m}$ -wavelength semiconductor laser with power of  $1 [\mu\text{J}/\text{pulse}]$  and a receiver with detectivity of  $1 \times 10^{10} [\text{cm} \cdot \text{Hz}^{1/2} \cdot \text{W}^{-1}]$ .

This system has merits in the following points; (a) the direct measurement without sampling, (b) the distribution measurement in three dimensional space, (c) the compact system mounted in a small car, (d) the safety system using a semiconductor laser with very small power, and (e) the good cost performance in fabrication and operation.

## 1. まえがき

現在、大気汚染気体の定常的な監視には化学反応を利用した湿式の分析法が用いられている。この方法は大気中からのサンプリングを必要とし、測定局の置かれた地点での1時間の平均値しか測定できないという欠点がある。一方、レーザー光と気体分子との相互作用を利用すれば、汚染気体濃度の3次元的空間分布を実時間で測定することが可能になり、大気汚染状況の的確な把握と予測に非常に有効である。

レーザー光と気体分子との相互作用には、ラマン散乱・蛍光散乱・ミー散乱・共鳴吸収等が知られており、各種のレーザー光源によって気体分子の測定がなされてきた。<sup>1)2)3)</sup>中でも微量汚染気体の検出には、大気圧下で吸収係数の大きい共鳴吸収が適している。汚染気体分子の共鳴吸収波長は  $2 \sim 20 \mu\text{m}$  の赤外領域にあり、レーザー光源としては近年実用段階に達しつつある鉛化合物半導体

レーザーが有望である。というのは鉛化合物半導体レーザーが、成分元素の組合せ、組成比及び動作温度によって発振波長を  $2 \sim 14 \mu\text{m}$  の間で変化できること、注入電流によって微小チューニングができること、発振スペクトル幅が  $0.2 \text{ \AA}$  以下と非常に狭いこと、コンパクトで操作が簡単であることなどに拠る。本稿では、鉛化合物半導体レーザーのパルス発振による差分吸収散乱法ライダの最小検出濃度の試算結果を報告する。Fig. 1 に鉛化合物半導体レーザーの発振波長範囲と各種気体分子の共鳴吸収波長を示す。<sup>4)</sup>

## 2. 測定システムの構成

半導体レーザー及び半導体光検出器による大気汚染気体濃度の測定システムを Fig. 2 に示す。電流源 (Current Supply) によってパルス電流が半導体レーザー (Semiconductor Laser) に注入されると、パルス状のレーザービームが数  $10^\circ$  の拡がり角で発射される。レンズによって平

\*大学院電子工学専攻

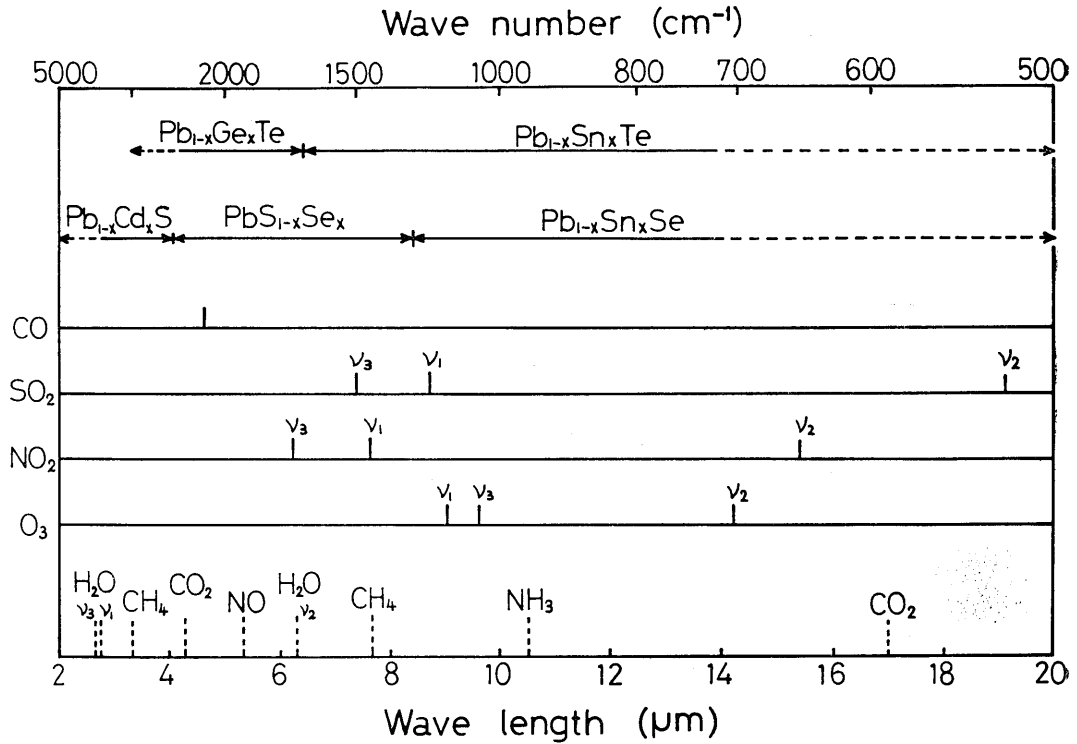


Fig. 1 Oscillation wavelengths of infrared semiconductor lasers and absorption wavelengths of gaseous molecules.

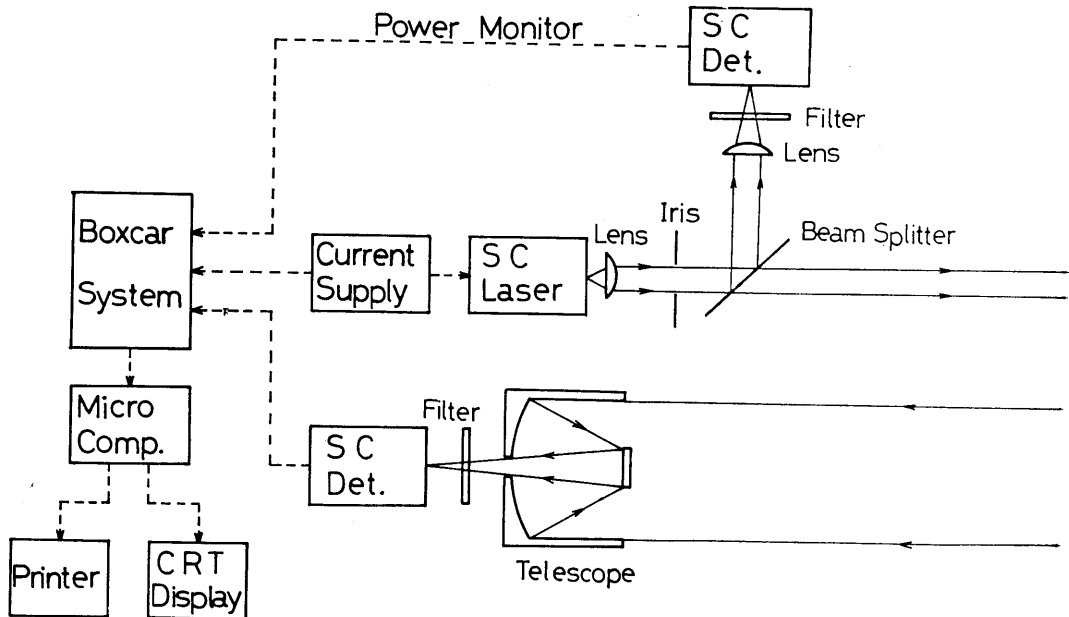


Fig. 2 Schematic diagrams of a semiconductor laser radar system.

行ビームにされた後、絞り (Iris) でビーム径が調節される。レーザビームの一部はビームスプリッタによってパワーモニタ用の半導体光検出器 (Semiconductor Photo Detector) に導かれる。メインビームは大気中を伝搬しながら被測定汚染気体の共鳴吸収を受ける。そして大気中に分布するエアロゾルによってミー後方散乱を受けたレーザ光は、球面波状に距離の2乗で減衰しながら且つ被測定汚染気体の共鳴吸収を受けながら受光望遠鏡へもどってくる。もどってきた光は集光された後、背景光の影響を低減させるために狭帯域フィルタを通して、信号用の半導体光検出器へ入る。電気信号に変換されたモニタパワー  $P_i(\lambda_i)$  と信号パワー  $P_r(\lambda_i)$  はボックスカー積分器へ送られる。この際、ボックスカー積分器のゲートは、所定の時刻 (測定したい汚染気体の位置とレーザ光のパルス幅で決まる) にオン・オフするようにセットされている。ボックスカー積分器で積算された各パワーは、マイクロコンピュータへ送られて演算処理が行なわれる。以上の操作が共鳴吸収の強い波長  $\lambda_1$  と弱い波長  $\lambda_2$  のレーザ光に対して繰り返し行なわれる。最終的に得られる汚染気体濃度はプリンタによって印字記録されるとともに、ブラウン管上に表示される。

3. 測定の原理

差分吸収散乱法ライダのレーザレーダ方程式は(1)式のように表わされる。

$$P_r(\lambda_i, R) = \{P_0(\lambda_i) K(\lambda_i) \cdot \beta(\lambda_i, V) \cdot L \cdot T^2(\lambda_i, R) \cdot Y(R) \cdot A_r / R^2\} \exp\left[-2\sigma_i \int_0^R N(R) dR\right] + P_B \quad (1)$$

式中の記号の意味は以下の通りである。

$\lambda_i$ : 被測定気体の共鳴吸収が極大となる波長を  $\lambda_1$ , 極小となる波長を  $\lambda_2$  とする ( $i=1, 2$ )

$\sigma_i$ : 波長  $\lambda_i$  での被測定気体の吸収係数

$R$ : レーザビームの片道光路長

$P_0(\lambda_i)$ : 半導体レーザの出力パワー

$K(\lambda_i)$ : 送受信光学系の効率

$A_r$ : 受光望遠鏡の有効面積

$T(\lambda_i, R)$ : 大気の透過率

$Y(R)$ : 視野重なるの係数

$N(R)$ : 距離  $R$  における被測定気体の濃度

$P_B$ : 背景光パワー

$P_r(\lambda_i, R)$ : 信号用半導体光検出器の入射光パワー

$\beta(\lambda_i, V)$ : ミー後方散乱係数

$V$ : 視程

$L$ : 空間分解能

モニタ用半導体光検出器の入射光パワーを  $P_i(\lambda_i)$  とすると

$$P_i(\lambda_i) = P_0(\lambda_i) \cdot k(\lambda_i) \quad (2)$$

となる。ここに  $k(\lambda_i)$  はモニタ用光路での光学系の効率である。(1)式と(2)式から

$$\frac{P_r(\lambda_1, R) / P_i(\lambda_1)}{P_r(\lambda_2, R) / P_i(\lambda_2)} = \frac{K(\lambda_1) / k(\lambda_1)}{K(\lambda_2) / k(\lambda_2)} \cdot \frac{\beta(\lambda_1, V)}{\beta(\lambda_2, V)} \cdot \frac{T^2(\lambda_1, R)}{T^2(\lambda_2, R)} \times \exp\left[-2(\sigma_1 - \sigma_2) \int_0^R N(R) dR\right] \quad (3)$$

$$\frac{1}{P} = K \cdot \beta \cdot T \exp\left[-2\sigma \int_0^R N(R) dR\right] \quad (4)$$

$$N \equiv \frac{1}{R} \int_0^R N(R) dR = \frac{1}{2\sigma R} \ln(K \cdot \beta \cdot T \cdot P) \quad (5)$$

を得る。ただし、(1)式において  $P_B=0$  として背景光の影響を無視した。(4)式において

$$\sigma \equiv \sigma_1 - \sigma_2 \geq 0$$

$$P \equiv \frac{P_r(\lambda_2, R) / P_i(\lambda_2)}{P_r(\lambda_1, R) / P_i(\lambda_1)} \equiv \frac{P_r(\lambda_2)}{P_r(\lambda_1)} \geq 1 \quad (6)$$

$$K \equiv \frac{K(\lambda_1) / k(\lambda_1)}{K(\lambda_2) / k(\lambda_2)} \simeq 1$$

$$\beta \equiv \frac{\beta(\lambda_1, V)}{\beta(\lambda_2, V)} \simeq 1$$

$$T \equiv \frac{T^2(\lambda_1, R)}{T^2(\lambda_2, R)} \simeq 1$$

であるから、(5)式より

$$N \simeq \frac{1}{2\sigma R} \ln P \quad (7)$$

となる。また、(7)式の両辺を  $R$  で微分すれば

$$N(R) \simeq \frac{1}{2\sigma} \frac{d}{dR} \ln P \simeq \frac{1}{2\sigma} \frac{dP}{dR} \quad (8)$$

を得る。(7)式から光路長  $R$  での平均汚染気体濃度  $N$  が求まり、(8)式から距離  $R$  での汚染気体濃度  $N(R)$  が近似的に求まる。厳密には、 $K, \beta, T$  及び  $P_B$  の補正を行なう必要がある。(8)式による汚染気体濃度  $N(R)$  の求め方を Fig. 3 に模式的に示す。

4. 測定誤差と最小検出濃度

レーザ・レーダの測定誤差の要因としては

- (a) 信号光に対して検出器内部で発生する雑音
- (b) 背景光が検出器に入射することによって生じる背景光雑音
- (c) 増幅器・接続回路・データ処理部で発生する雑音
- (d) 半導体レーザの出力強度及び発振周波数のゆらぎ
- (e) 光学系のゆらぎ
- (f) 測定対象気体以外の気体による吸収
- (g) レーザビームの大気中での擾乱

が考えられる。半導体レーザの出力強度のゆらぎはパワーモニタをすることで解決でき、発振周波数のゆらぎは注入電流をフィードバック制御することによって非常に

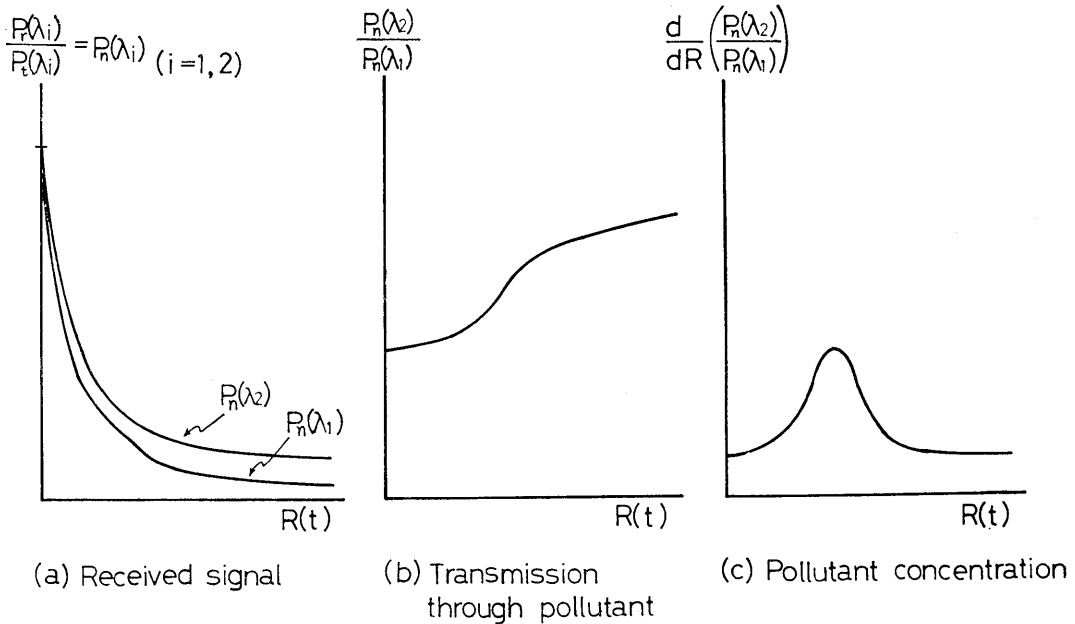


Fig. 3 Estimation of pollutant concentration from received signals by Differential Absorption Lidar.

小さくすることができる。光学系のゆらぎは、他の雑音成分に比べてかなり小さいものと考えられる。また、レーザービームの大気中での擾乱は数10メートル程度の光路長ではほとんど問題にならない。測定対象気体以外の気体の吸収は、レーザー発振波長の設定を最適化することにより、その影響を取り除くことができる。残る(a), (b), (c)の要因のうち、(c)の雑音は実際の回路設計において高速パルス応答を実現するための工夫が必要となるが、(a), (b)の雑音に比べて小さくすることは可能である。背景光雑音は、狭帯域フィルタとボックスカー積分器により除去し得るが、一方半導体光検出器内部で発生する雑音は除去し得ない。従って、汚染気体の理論的最小検出濃度の算出は、半導体光検出器内部で発生する雑音が測定誤差の最大要因であるとして行なうのが妥当である。

そこで、前節の(5)式に「誤差波及の法則」を適用して汚染気体濃度の測定誤差を標準相対偏差の2乗のかたちで表わすと次式ようになる。<sup>3)</sup>

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta N}{N}\right) &= \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma}\right) + \left(\frac{1}{2N\sigma R}\right)^2 \left[ \left(\frac{\Delta K}{K}\right)^2 \right. \\ &\quad \left. + \left(\frac{\Delta \beta}{\beta}\right)^2 + \frac{\Delta T}{T} \right] \\ &\quad + \left(\frac{1}{2N\sigma R} \cdot \frac{\Delta P}{P}\right)^2 \end{aligned} \quad (9)$$

ただし、記号「 $\Delta$ 」は標準偏差を表わし、記号「 $-$ 」は平均値を表わす、 $\Delta \sigma$ ,  $\Delta K$ ,  $\Delta \beta$ ,  $\Delta T$  は  $\Delta P$  に比べて十分に小さく、(9)式は次式のように書き直すことがで

きる。

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{1}{2N\sigma R} \cdot \frac{\Delta P}{P} \quad (10)$$

また、前節の(6)式にも誤差波及の法則を適用して

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta P}{P}\right)^2 &= \left(\frac{\Delta P_r(\lambda_1, R)}{P_r(\lambda_1, R)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta P_r(\lambda_2, R)}{P_r(\lambda_2, R)}\right)^2 \\ &\quad + \left(\frac{\Delta P_i(\lambda_1)}{P_i(\lambda_1)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta P_i(\lambda_2)}{P_i(\lambda_2)}\right)^2 \end{aligned} \quad (11)$$

ここに、 $\Delta P_r(\lambda_i, R) \geq \Delta P_i(\lambda_i)$ ,  $\bar{P}_r(\lambda_i, R) \ll \bar{P}_i(\lambda_i)$  であるから

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta P}{P}\right)^2 &= \left(\frac{\Delta P_r(\lambda_1, R)}{P_r(\lambda_1, R)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta P_r(\lambda_2, R)}{P_r(\lambda_2, R)}\right)^2 \\ &= 2 \left(\frac{\Delta P_r(\lambda_1, R)}{P_r(\lambda_1, R)}\right)^2 \end{aligned}$$

即ち

$$\frac{\Delta P}{P} = \sqrt{2} \frac{\Delta P_r(\lambda_1, R)}{P_r(\lambda_1, R)} \quad (12)$$

となる。ただし、(11)式において  $P_r(\lambda_i, R)$  と  $P_i(\lambda_i)$  との共分散を無視したが、実際上支障はない。<sup>2)</sup> 半導体光検出器内部で発生する雑音が測定誤差の最大要因であると仮定しているので

$$\frac{V_S}{V_N} = \frac{\bar{P}_r(\lambda_1, R)}{\Delta P_r(\lambda_1, R)} = \sqrt{2} \frac{\bar{P}}{\Delta P} \quad (13)$$

とおくことができる。ここに  $V_S$ ,  $V_N$  は各々半導体光検出器の信号電圧、雑音電圧である。また、 $V_S$ ,  $V_N$  は半導体光検出器の性能を表わす比検出率  $D^*_{\lambda}$  [ $\text{cm} \cdot \text{Hz}^{1/2} \cdot \text{W}^{-1}$ ] を用いて次式で表わされる。

$$\frac{V_s}{V_N} = \frac{D^*_1 \cdot P_r(\lambda_1, R) \sqrt{A}}{\sqrt{\Delta f}} \quad (4)$$

ただし、 $A$ は検出器の受光面積、 $\Delta f$ は実効雑音帯域幅である。(10)式に(13)式、(14)式を代入すると

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{\sqrt{\Delta f}}{\sqrt{2} \bar{N} \sigma R D^*_1 P_r(\lambda_1, R) \sqrt{A}} \quad (5)$$

を得る。 $\Delta N/N=1$ なる濃度を最小検出濃度  $N_{\min}$  と定義すると

$$N_{\min} = \frac{\sqrt{\Delta f}}{\sqrt{2} \sigma R D^*_1 P_r(\lambda_1, R) \sqrt{A}} \quad (6)$$

である。(6)式に(1)式 ( $P_B$  を除く) を代入し、さらにボックスカー積分器による  $S/N$  比改善率  $B$  を付け加えると、

$$N_{\min} = \frac{1}{B} \cdot \frac{1}{\sqrt{2} \sigma} \cdot \frac{\sqrt{\Delta f}}{D^*_1 \sqrt{A}} \cdot \frac{R}{P_0 \cdot K \cdot \beta \cdot L \cdot A \cdot T^2 \cdot Y} \quad (7)$$

となる。

二酸化窒素の  $6.2\mu\text{m}$  帯の共鳴吸収を利用した場合の最小検出濃度の計算結果を Fig. 4 に示す。この計算に用いた数値は以下の通りである。

$$K=0.25$$

$$\beta=1.9 \times 10^{-7} [\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}] \text{ (視程 } 10\text{km)}$$

$$L=3[\text{m}]$$

$$R=20[\text{m}]$$

$$A_r=0.06[\text{m}^2]$$

$$T=0.9^{\circ}$$

$$Y=0.5$$

Fig. 4 より積分時間 5[sec] で、現在定常観測に使われている化学的分析法による測定精度  $0.01[\text{ppm}]$  と同じ精度を得ることがわかる。1地点 (空間分解能  $3[\text{m}]$ ) の濃度を知るには、2波長分 ( $\lambda_1$  及び  $\lambda_2$ ) の積分時間、即ち  $10[\text{sec}]$  が必要である。また、1方向 (レーザービームの発射方向) 当たり 3地点の濃度を測定するのであれば、 $30[\text{sec}]$  の積分時間を要する。従って1方向あたりの測定時間  $t_m[\text{sec}]$  は今の場合、

$$t_m=30+\alpha [\text{sec}]$$

となる。ここに  $\alpha$  は積分時間以外の測定所要時間であり、レーザービームの伝搬時間、データ処理時間等が含まれる。

### 5. まとめ

半導体レーザーを用いた測定システムによって、短時間高精度 ( $\text{NO}_2$  の場合、1ポイント10秒、 $0.01\text{ppm}$ ) の汚染気体濃度検出が可能であることが計算から明らかとなった。このシステムの特徴として、さらに

#### イ) 状態分析

大気中から試料をサンプリングする必要がなく、大気の状態を乱さずに測定ができる。

#### ロ) 空間分布測定

汚染気体濃度の鉛直分布を始め、3次元的な空間分布が測定できる。

#### ハ) 小型・軽量

半導体レーザーは他のレーザー光源に比べ小型軽量で注入電流により発振させるので操作が容易である。また、受光望遠鏡、電源部、データ処理部も含めて全システムを小型自動車に搭載できるので、市街域での局所的汚染分布測定に威力を発揮する。

#### ニ) 安全・経済的

半導体レーザーは出力が小さく、測定距離を大きくとれないという欠点はあるが、市街地での測定には数10メートル程度の光路長でも十分で、人体への安全性という点では小出力であることがむしろ好ましいといえる。またコストパフォーマンスの点でも優れている。

が挙げられる。今後は、このシステムを実験的に検証す

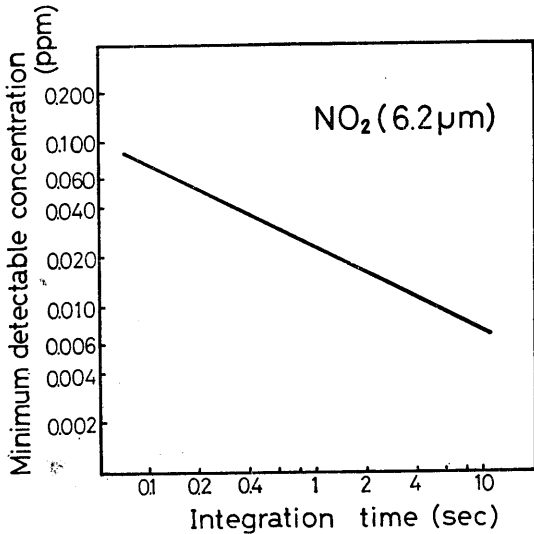


Fig. 4 Relationship between the minimum detectable concentration and the integration time of boxcar receiver.

$$B=2.24 \times 10^3 \times \sqrt{t_s} \quad t_s[\text{sec}]; \text{積分時間}$$

$$\sigma=5 \times 10^{-4} [\text{ppm}^{-1} \text{m}^{-1}]$$

$$\Delta f=0.22[\text{Hz}]$$

$$D^*_1=1 \times 10^{10} [\text{cm Hz}^{\frac{1}{2}} \text{W}^{-1}]^{\circ}$$

$$A=0.5 \times 10^{-2} [\text{cm}^2]$$

$$P_0=1 [\mu\text{J}/\text{pulse}]$$

ることが課題である。

なお、本研究の一部は文部省科学研究費環境科学特別研究（課題番号 403020）の一環として行なった。御討論頂いた関係各位に感謝致しますとともに、日頃、激励を頂いております本学教授服部貞夫先生に深謝いたします。

#### 文 献

- 1) R. T. Ku, E. D. Hinkley: Long-path monitoring of Atmospheric Carbon Monoxide (1975, Regional Airpollution Study, St. Louis)
- 2) N. Takeuchi, H. Shimizu, M. Okuda: Appl. Opt. 15 (1978) 2734
- 3) 浅井和弘, 黒岩博司, 五十嵐隆: 電子通信学会論文誌 60-C (1977) 624
- 4) 権田俊一, 竹内延夫, 植田隆一: 電子工業月報20-5 (1978) 16
- 5) 環境科学研究報告集 B19-R52-1 (1979)
- 6) 神保孝志: Pb Sn Te 赤外線検出器の研究 (昭和53年2月名古屋大学学位論文)
- 7) G. Schaerer: Infrared Physics 15 (1975) 125