白色光レーザーを用いた温室効果ガスの計測法の開発

染川智弘[1] (somekawat@ilt.or.jp)
眞子直弘[2], 久世宏明[2]
[1](公財)レーザー技術総合研究所
[2]千葉大学環境リモートセンシング研究センター

白色光ライダー

高強度フェムト秒レーザーを希ガスに集光することで得られるコヒーレント白色光は元のレーザーの指向性、干渉性、パルス幅を有しています。さらに、生成前の偏光特性を保持していることがわかりました。この白色光をライダー(レーザーレーダー)の光源として用いる「白色光ライダー」は任意の多波長での大気解析を可能にします。また、ライダーではレーザーの偏光特性を利用することによって、散乱体を形状によって分類することができるため、黄砂など非球形微粒子の識別も行えます。

図1. 白色光ライダー観測の様子

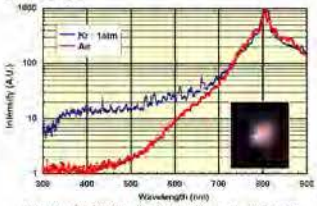

図2. ピーク強度1TW、波長800nmのレーザーを1atmのKrガスと大気中に集光させ得られた白色光スペクトル

図2が高強度フェムト秒レーザーを1気圧のKrガス・大気に集光して得られた白色光スペクトルです。大気中で生成させるよりも、非線形屈折率が大きいKrガスのほうが可視域のスペクトル強度が大きいことがわかります。

温室効果ガスによる地球温暖化の進行は、地球規模での影響の大きさからみて重要な環境問題のひとつです。温室効果を示す水蒸気、CO_2、メタン等の気体は赤外域に吸収帯を持っており、コヒーレント白色光を用いれば同時観測が可能になります。

コヒーレント白色光によるCO_2の赤外吸収計測

図3にコヒーレント白色光を用いたCO_2の赤外吸収スペクトルを示します。波長800 nm、パルスエネルギー50 mJ、パルス幅100 fsのレーザーを1気圧のKrガスに集光して得られた白色光を9 mの長さのガスセルに導入し、透過光を測定しました。実線がガスセルを1気圧のCO_2で封入した場合であり、点線は真空状態です。赤外分光器は浜松ホトニクス社製C9914GBを利用し、2次光カットフィルターとしてARコートを施したSi窓を用いました。

白色光は2200 nm程度までスペクトルを広げており、矢印で示したのがCO_2の吸収ラインです。2100 nm程度から見られる急激な強度上昇は、2次光の寄与だと考えられます。実際の大気観測では水蒸気による吸収の干渉を受けます。そのため、水蒸気の吸収がなく、透過率変化が大きな2000 nm付近の吸収帯が最適ではないかと考えられます。

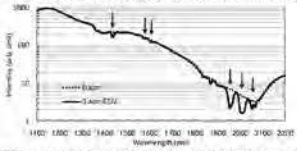

図3. コヒーレント白色光の9 mガスセル(CO_2ガス:0.1 atm)の赤外透過スペクトル

白色光DOASによるCO_2濃度測定

図4(a)にフェムト秒TWレーザーシステムを用いた長光路差分吸収分光(DOAS)法実験配置図を示します。高強度フェムト秒レーザーパルスを0.5 atmのKrガスに焦点距離5 mのレンズで集光することによって白色光を生成させています。生成した白色光は曲率10 mのアルミ凹面鏡でコリメートした後、大気中を伝搬させました。屋外観測では地理的な制約から、ミラーを用いて複数回折り返すことによって最長452 mの光路を得ています。他の実験では1 atmのKrガスを用いて白色光を生成させることが多いですが、長光路を伝搬させた際のビーム広がり角や生成したスペクトル強度から、伝搬ロスが最も少ない非線形媒質として0.5 atmのKrガスを採用しています。

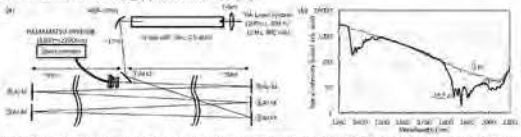

図4. (a)TWレーザーシステムを用いた白色光DOASの実験配置図、(b)光路長:0, 452 mの白色光DOASスペクトル

白色光DOAS実験によって測定されたDOASスペクトル(光路長:0, 452 m)を図4(b)に示します。赤外分光器の露光時間は1秒としました。1340~1500、1780~1950 nmに見られる大きな吸収スペクトルは水蒸気によるものであり、微弱ではありますが、2000 nm付近にCO_2の吸収スペクトルが確認できます。HITRANデータベースを用い、CO_2濃度を398 ppm、温度は2.6℃、湿度は77%としてシミュレーションを実施しました(図5)。図5上図で示した透過率で評価する従来手法では、実験データとシミュレーション結果があまり一致していません。一方、DOAS法の解析にならい、波長とともに緩やかに変化する成分を、波長の低次多項式を用いて取り除いた光学的厚さでは、従来手法よりも一致していることがわかります(図5下)。DOAS法に則した手法では参照スペクトルのSNが悪い際に従来手法よりも有効となるため、中心波長の800 nmから離れた2000 nm付近の赤外域の白色光強度が微弱であり、参照・吸収ともにSNの良いスペクトル強度が得られなかったことが原因だと考えられます。したがって、TWレーザーを用いた白色光の吸収計測による濃度評価にはDOAS法に則した濃度評価手法が有効であることがわかりました。

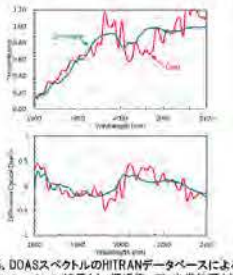

図5. DOASスペクトルのHITRANデータベースによるシミュレーション結果(上:透過率、下:光学的厚さ)

白色光DOASの実用化に向けて

フェムト秒レーザーを基礎とするTWレーザーシステムは高価、大型であり実用化には不向きです。そこで、白色光ライダーの実用化を目指して、可搬性のある小型の白色光レーザー光源を利用した研究も実施しています。

図6(a)に実験配置図を示します。波長1064 nm、繰り返し20 kHz、パルス幅8 nsのマイクロチップレーザーをフォトニック結晶ファイバーに導入することにより、波長帯域420~2400 nm、平均出力45 mWの白色光が得られます。図6(b)が568 m伝播後の透過率スペクトルです。点線は大気中のCO_2濃度を398 ppm、湿度を52%としてMODTRANで計算した透過率であり、非常によく一致していることがわかります。

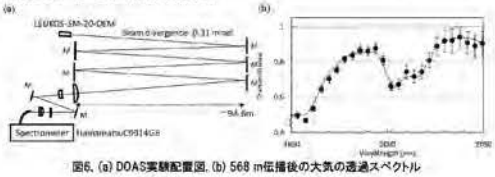

図6. (a) DOAS実験配置図、(b) 568 m伝播後の大気の透過スペクトル

白色光DIAL観測に向けて

温室効果ガスの位置情報を得る手法として差分吸収ライダー(DIAL)があります。DIALでは、測定対象の吸収のある(On)波長、ない(Off)波長の2波長のレーザー光を使用し、その差分を取ることで対象の位置情報を得ます。そのため、測定対象の吸収特性にあったレーザーを選定・開発する必要がありますが、広帯域な白色光レーザーを用いれば任意の波長での観測が可能となります。

白色光強度の大きな近赤外に吸収を持つ水蒸気(On: 725, 730, Off: 750)、酸素(On: 760, Off: 780)を測定対象とし、それぞれの波長帯域の干渉フィルターを1分間隔で交換して高度分布情報を得るシステムを構築し、観測を実施しました(図7)。DIAL観測による濃度評価は、エアロゾルからの散乱信号によって行いますので、エアロゾル濃度が高い観測日として大阪に黄砂が飛来した日を選びました。1分間隔で観測波長を変更していますが、ほぼ同じ黄砂のプロファイルを観測できています(図7(b))。

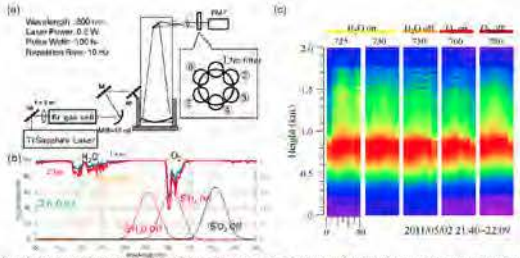

Fig. 7 (a) 白色光DIALの観測配置図、(b) HITRANデータベースで計算したH_2OとO_2の吸収スペクトルと本システムで用いた干渉フィルター、(c)白色光DIALによる波長725, 730, 750, 760, 780 nmの距離補正信号.

DIAL法では一般的にOn, Off波長は近傍を選ぶために、減衰係数α、後方散乱係数βは一定であると近似して対象の濃度を求めますが、本手法ではOn, Off波長の波長差が大きいために、α、βの補正を加えたアルゴリズムで評価しました(図8)。この補正アルゴリズムを観測データに適用しましたが、ゾンデの水蒸気の観測結果を再現できていないことがわかります。これはOn, Off波長の測定を1分間隔で行っているために、1分ごとのエアロゾルの変動が水蒸気リトリーバルに影響を与えているのではないかと考えられます。

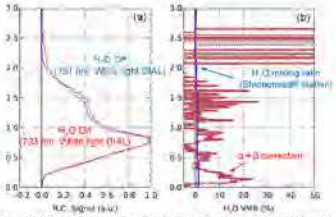

Fig. 8 (a) 白色光DIALからのライダー信号、(b)$\alpha+\beta$補正アルゴリズムを用いた水蒸気の導出結果

まとめと今後の課題

高強度フェムト秒レーザー技術とライダー技術を融合させた白色光ライダーを用いて、温室効果ガス検出のためのDOAS法の開発を行いました。温室効果ガスの吸収帯がある赤外域では生成した白色光強度が小さくなりますが、DOAS法に則した評価手法により大気中CO_2の濃度を評価しました。今後は白色光DOASの濃度評価手法の改良や、白色光DOASの実用化に向けた研究、温室効果ガスの位置情報までわかる白色光DIALに向けた研究を実施し、白色光ライダー研究の幅を広げていきたいと考えています。

本研究は千葉大環境リモートセンシング研究センター共同利用研究(CJ16-05)によって遂行されました。ここに謝意を表します。

References

1. T. Somekawa, C. Yamanaka, M. Fujita, M. C. Galvez, Jpn. J. Appl. Phys. 45, L165-L168, 2006.
2. T. Somekawa, C. Yamanaka, M. Fujita, M. C. Galvez, J. Appl. Phys., 103, 043101, 2008.
3. T. Somekawa, C. Yamanaka, M. Fujita, M. C. Galvez, Jpn. J. Appl. Phys. 47, 2155-2157, 2008.
4. T. Somekawa, M. Fujita, and Y. Izawa, Appl. Phys. Express, 3, 082401, 2010.
5. T. Somekawa, N. Manago, H. Kuze, and M. Fujita, Opt. Lett., 36, 4782-4784, 2011.
6. T. Somekawa, N. Manago, H. Kuze, and M. Fujita, Proc. of SPIE, 10006, 1000605, 2016.