

Nd:YAG レーザーを用いた差分吸収ライダーによる二酸化窒素の観測性能

Development of a differential absorption lidar for nitrogen dioxide measurement

中里真久¹、永井智広¹、酒井哲¹、内野修^{1,2}、真野裕三¹、入江仁士³、北和之⁴

Masahisa Nakazato¹, Tomohiro Nagai¹, Tetsu Sakai¹, Osamu Uchino^{1,2}, Yuzo Mano¹,
Hitoshi Irie³, and Kazuyuki Kita⁴

1. 気象研究所、2. 国立環境研究所、3. 海洋研究開発機構、4. 茨城大学

1. Meteorological Research Institute, 2. National Institute of Environmental Studies,

3. Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 4. Ibaraki University

Abstract: Principle and system design of a DIAL system for tropospheric nitrogen dioxide measurement are examined and carried out. The existing three-wavelength UV ozone DIAL will be improved for this purpose. The wavelengths of 395.6 nm and 396.8 nm will be employed. Systematic error of nitrogen dioxide observation is estimated to be $4 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$ in spectrum factor, which is somewhat larger than that for ozone ($3 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$). As a result of the simulation, the aerosol backscattering interference is a major source of the systematic error, which is small enough for our purpose.

1. はじめに

二酸化窒素（以下、NO₂）は、代表的な大気汚染物質の1つである。大気中の窒素の酸化で生じる。自動車の排気ガスなど燃焼に伴って発生する人為起源のものや、雷放電によって発生する自然起源のものがあるが、人工衛星観測により、その地理的分布と人為的発生源の重要性が明らかになってきている。太陽紫外線による光化学反応で、NO₂ 1分子からオゾン1分子が生成される。このように、両分子は相補的な関係があるため、オゾンと同時にNO₂の観測を、1台の観測装置で行うことは効果的である。NO₂の高度分布観測には、MAX-DOAS法などいくつかの方法が存在するが、観測精度、分解能、コストなどのいずれかの面で課題があるため、オゾンとNO₂の高度分布の決定的な観測手法はまだ存在しないのが現状である。

本研究では、ライダーによるNO₂の観測手法について調べた。ライダーを用いた従来のNO₂観測では、主に2台の色素レーザーを用いた装置が開発されてきた。最近、Nd:YAGレーザー第3高調波（355nm）をポンプ光源とする誘導ラマン散乱によって、NO₂の高度分布が測定された（Hu et al., 2003）。

我々のグループでは、長期の安定した観測を可能とする目的で、固体レーザー1台のみを用いた差分吸収ライダーを開発し、オゾン、二酸化硫黄（以下、一部にSO₂の語も使用）の鉛直分布の観測が可能であることを示してきた。本研究の目的

は、既存のオゾンライダーの小規模の改造によって、オゾン及びSO₂の観測機能を維持したままで、NO₂の観測が可能であるかどうかを明らかにすることである。

2. NO₂の観測原理

波長390nm付近にあるNO₂の吸収線のピークと谷の波長を、誘導ラマン散乱を用いて生成し、オゾンの測定の場合と同じように、差分吸収法でNO₂を測定する。

Fig.1にNO₂の吸収断面積の波長依存性を示している。この図中には、Nd:YAGレーザーの高調波を用いた誘導ラマン散乱で生成可能な波長を▼印で示している。第3高調波を重水素でラマンシフトして得られる波長396.8nmの吸収断面積が $5.2 \times 10^{23} \text{ cm}^2$ であり、off波長に適している。その両側（395.6nm（同メタン）と398.0nm（同水素））に $6 \times 10^{23} \text{ cm}^2$ 以上の大きさの吸収ピークがあるため、いずれかの波長をon波長として使用できる（中里ほか, 2008）。

測定精度の見積もりには、スペクトル因子が使われている。Fig.2は、NO₂観測におけるスペクトル因子の計算結果である。スペクトル因子 B_λ は、差分吸収法において、後方散乱及び消散による補正項の係数として現れ、次の式で定義される。

$$B_\lambda = \frac{1}{\lambda_{\text{off}} \left[\frac{\Delta\sigma}{\Delta\lambda} \right]} \quad (1)$$

ここで λ_{off} は off 波長、 $\Delta\sigma$ 及び $\Delta\lambda$ はそれぞれ on-off 波長間の吸収断面積差、及び波長差を表す。Fig.2 から、395.6/396.8nm と 396.8/398.0nm の波長組を使用した時に観測精度が高くなる。後者の場合、THG と FHG を使用することになるため、レーザー装置の構造上、1 台のレーザー装置で2 波長を生成するのが難しくなる。いずれの波長組の場合でも、ラマンセルを2 本使用する必要がある。以下では、波長組 395.6/396.8nm の使用を想定した装置構成とその可能性を検討する。

3. 装置構成とシミュレーション

気象研究所の対流圏オゾン/ 二酸化硫黄観測用差分吸収ライダーを改造することにより NO₂ の観測が可能となるようにする。この装置では、Nd:YAG レーザー第4 高調波 (波長 : 266nm) を二酸化炭素による誘導ラマン散乱で波長変換し、第1 Stokes 線から第3 Stokes 線までの3 波長 (276nm、287nm、299nm) を得ている (Nakazato et al., 2007)。この装置の送信部レーザー筐体内に THG 結晶 (波長 : 355nm) を取り付ける。また、既存のラマンセルに並列して、新たに別のラマンセルを2 本設置し、メタンと重水素を充てんする。これにより、395.6/396.8nm の波長組を生成できるようにする。これに加えて、受信系の干渉フィルターをこれらの波長の受信に適したものに置き換える。装置構成を Fig.3 に示す。この装置構成では、3 本のラマンセルが並列に設置されるが、CO₂ を充てんしたラマンセルへ導入するためのミラーは全反射ミラーであり、NO₂ の測定時にはこの全反射ミラーは取り外される。従って、オゾン/二酸化硫黄の測定と、NO₂ の測定を同時に行うことはできない。オゾン/二酸化硫黄観測と NO₂ 観測の変更に必要な作業は、

- 1) THG 結晶と FHG 結晶の入れ替え、
- 2) ラマンセルへ誘導するためのミラーの調整、
- 3) 干渉フィルターの交換、

であり、所要時間は最短で 10 分~20 分程度と考えられる。

Fig.4 と Fig.5 に観測シミュレーションの結果を示す。NO₂ の濃度は $1.5 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ を仮定している。この場合、10mJ/pulse のエネルギーがあれば、1000 ショットの積算で、高度 20km 程度までの観測が可能であると考えられる (この場合、装置定数 $C=2.5 \times 10^{15} \text{ m}^3$)。誤差要因としては、大気分子によ

る消散、エーロゾル後方散乱及び消散、他の気体による吸収の寄与がある。エーロゾル後方散乱の寄与がやや大きいことが予想される。オゾンと SO₂ による影響はほとんどない。

4. まとめ

本研究から、既存のオゾン/二酸化硫黄観測用 DIAL を用いて、オゾンと NO₂ の同時観測は難しいが、固体レーザー 1 台を用いた NO₂ の観測は可能であることが分かった。今後、装置の改良を行い、MAX-DOAS 法との同時観測により、測定値の検証を行う予定である。

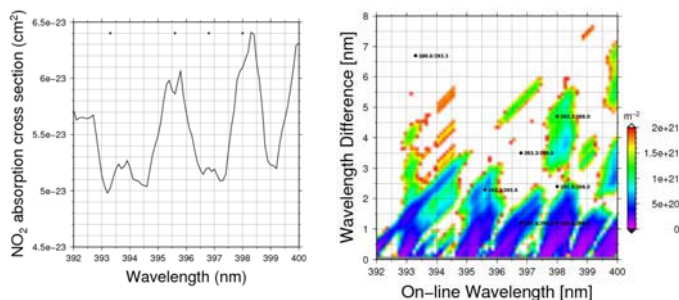


Fig.1 (left) Absorption cross section of nitrogen dioxide.

Fig.2 (right) Spectrum factor for NO₂ measurement.

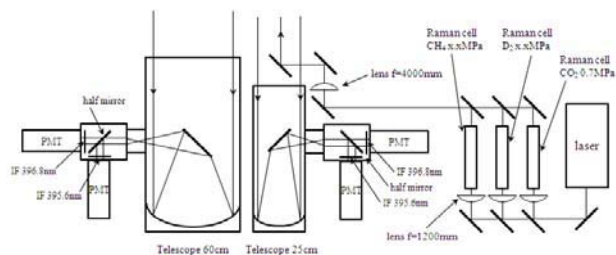


Fig.3 An improvement plan of MRI UV DIAL to NO₂ measurement.

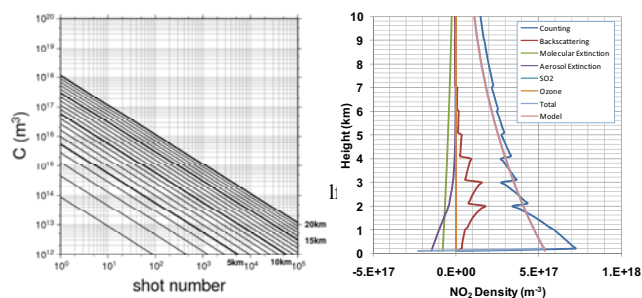


Fig.4 (left) Relationship between shot number and measurable height as a function of system constant C for the wavelength of 396.8 nm.

Fig.5 (right) Result of a simulation of NO₂ DIAL measurement.

Hu, S., H. Hu, Y. Zhang, J. Zhou, G. Yue, K. Tan, Y. Ji, and B. Xu, 2003: Chinese Opt. Lett. 1, 435-437.

Nakazato, M., T. Nagai, T. Sakai, and Y. Hirose, 2007: Appl. Opt. 46, 2269-2279.

中里、永井、酒井、真野、2008: 第34 回リモートセンシングシンポジウム講演論文集, 23-26.