

共振器内分散特性を利用した微量気体高感度検出法の開発

High Sensitive Detection of Trace Gases Using Intracavity Dispersion

山本智一、麦野明、塩見高史、尾松孝茂*、盛永篤郎**、久世宏明、竹内延夫

Toshikazu Yamamoto, Akira Mugino, Takafumi Shiomi, Takashige Omatsu*,

Atsuo Morinaga**, Hiroaki Kuze, Nobuo Takeuchi

千葉大学環境リモートセンシング研究センター、*千葉大学工学部、

**東京理科大学理工学部

Center for Environment Remote Sensing, *Faculty of Engineering, Chiba University.

**Faculty of Science and Engineering, Science University of Tokyo

Abstract

We propose a novel detection technique where the change of the free spectral range of a high finesse optical cavity is monitored when an objective gas is introduced. This change is caused by the dispersion of the gas. Since the noise level can be reached to shot noise limit, the sensitivity of 1 ppt (10^{-12}) can be reached, about forty times better than frequency modulation spectroscopy.

1. はじめに

今日、地球温暖化、オゾン層破壊、酸性雨などの地球規模の環境問題が注目を集めるようになってきた。これらの問題に、フロン、メタン、窒素酸化物などが深く関係していることが知られており、これらの気体の分布状況などを測定することが重要である。しかし、これらの気体は非常に微量で、その濃度は約数 10ppt であり、既存の FM 分光などの測定方法では測定不可能である。そこで、我々は、高フィネスのファブリペロー型光共振器にガスを封入し、レーザー周波数安定化の手法の一つである DFM (Dual Frequency Modulation) 法を用いた計測方法を提案する。この方法を用いた場合、理論的な検出限界濃度として数 ppt が得られる。

2. 原理

DFM 法 (図 1 参照) によって周波数 ν_0 のレーザーから発生した ± 1 次の各サイドバンド $\nu_0 \pm \nu_1$ をそれぞれ基準共振器にロックし、両サイドバンドの間隔 ν_B

$$\begin{aligned} \nu_B &= \frac{qc}{2d} \left[\left(1 + \frac{m}{q} \right) (1 - \Delta_{\nu_0 + \nu_1}) - \left(1 - \frac{m}{q} \right) (1 - \Delta_{\nu_0 - \nu_1}) \right] \\ &\approx -\nu_0 (\Delta_{\nu_0 + \nu_1} - \Delta_{\nu_0 - \nu_1}) + \frac{mc}{2d} \end{aligned} \quad (1)$$

を測定する。ここで、 q 、 m は任意の整数、 c は光速、 d は共振器長、 $1 + \Delta$ は屈折率である。

ガスを封入した共振器では、測定対象となる気体の分散効果によって図 2 に示すように屈折率が変化し、その結果、間隔 ν_B は

$$\Delta \nu_B = \nu_B - \frac{mc}{d} = -\nu_0 (\Delta_{\nu_0 + \nu_1} - \Delta_{\nu_0 - \nu_1}) \quad (2)$$

だけ変化する。屈折率の変化は気体の濃度に依存しているため、この変化を測定することで微量気体の濃度を測定することができる。

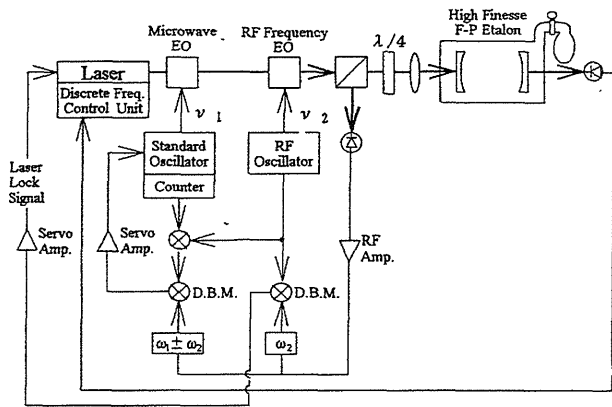


Fig.1 Block diagram of DFM

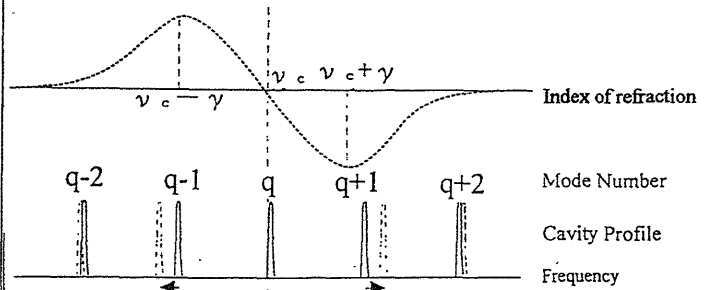


Fig.2 Change of FSR due to the introduction of gas

3. 測定感度の検討

1気圧付近の圧力下での試料気体を考え、その1本のスペクトル線に着目して考える。まず、サイドバンドを発生させるときの最適な変調周波数 ν_1 を求める。±1次のサイドバンド間隔 ν_B の変化量 ξ は測定対象の気体のスペクトルを Lorentzian と仮定すると、

$$\xi \propto \frac{c}{2\pi} \frac{\gamma_0}{\gamma} p \cdot r \left(\frac{X_{+m}}{1+X_{+m}^2} - \frac{X_{-m}}{1+X_{-m}^2} \right) \quad (3)$$

である。ここで、

$$X_{\pm m} = \frac{\nu_0 \pm m \cdot \nu_{FSR} - \nu_c}{\gamma} = \frac{\nu_0 - \nu_c}{\gamma} \pm m \frac{\nu_{FSR}}{\gamma} \quad (4)$$

γ_0 は測定ガスの大気圧におけるスペクトル幅、 γ はスペクトル幅、 p は圧力、 ν_c は測定ガスのスペクトル中心周波数、 r は気体の混合比、 ν_{FSR} は自由スペクトル領域である。

図2のように、共振器の q 番目のモードを吸収の中心周波数 ν_c に一致させる。このとき変調周波数が $\nu_1 / \gamma = m \cdot \nu_{FSR} / \gamma = 1$ という、スペクトル幅 γ に等しく、かつ ν_{FSR} の整数倍 (図では1倍) となるとときに感度が最大となることが分かる。主な気体について FM 分光との感度の比較を行った結果を表1に示す。

Present method

Laser Power = 1mW

Finesse = 10000

Presser = 0.1atm

$m \cdot \nu_{FSR} / \gamma = 1$

FM spectroscopy

Optical Pass = 100m

Minimum Detectable Absorption 10^{-6}

Objective Gas	Wavelength λ (μm)	Line Strength S (cm/mol)	FWHM γ (cm^{-1})	Sensitivity FM Spectroscopy (ppb)	Sensitivity This Method (ppb)
CH ₄	1.651	8.7×10^{-22}	0.050	0.7	0.021
NO ₂	0.800	5.0×10^{-23}	0.073	18	0.51
CO	1.567	2.3×10^{-23}	0.066	36	0.88
CO ₂	1.563	1.6×10^{-23}	0.060	47	1.1

Table 1 Comparison of Sensitivity