

19 レーザラマンレーダの基本的パラメータに関する研究

Studies of Fundamental Parameters
for the Laser-Raman Radar

清水 浩 小林 喬郎 稲場 文男

Hiroshi SHIMIZU Takao Kobayashi Humio Inaba

東北大学 電気通信研究所

Research Institute of Electrical Communication,
Tohoku University

1 はじめに

ラマン散乱現象をレーザレーダに応用するレーザラマンレーダ方式^{1)~3)}は遠隔臭の汚染物質を、定量的に、しかも距離分解能をもちて観測できる利点を有する。

我々はこの方式の提案を行なって以来、実用化のための基礎的な実験や基本的な動作の解析を行なってきた。

この方式の実用化のための重要な基本的パラメータの一つとして、まず汚染物質のラマン散乱断面積の正確な値が必要である。我々は3371Åでバルス発振を行なうN₂レーザを励起光源として用いて、N₂分子を基準とする、14種に及ぶ気体の相対的なラマン散乱断面積の測定を行なった。⁴⁾

また、ラマンシフト分布が、装置の構成に与える影響や、最小検出感度と測定可能距離についての考察等を行ない、実用化のための基礎データを提供した⁵⁾。

さらに、この方式の動作実験を行ない、汚染物質の密度を実験的に導くために、実際の汚染ガスにレーザ光を照射して測定を行ない、本方式の有用性を示すことができた。

ここでは、以上の結果をまとめて報告する。

2. ラマン散乱断面積の測定

Placzekの分極率理論⁵⁾に基づいて、Fig 1のよう構成での微分散乱断面積を求めると、次式のように与えられる。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = \left(\frac{2\pi}{c}\right)^4 \frac{b_j^2 (\nu - \nu_j)^4 g_j}{1 - \exp(-h\nu_j/kT)} (\alpha_j'^2 + \frac{4}{45} \beta'^2) \quad (1)$$

ここで T は分子温度、 g_j は分子の j 番目の振動モードの縮退度、 $\alpha_j'^2$ 及び β'^2 はそれぞれ、ラマン分極率テンソルの等方性成分及び異方性成分 $b_j [=(h/8\pi^2\nu_j)^2]$ は振動モードの零点振動の振幅、 k はボルツマン定数である。

我々は紫外域の 3371 \AA でリール共振を行なう N_2 気体レーザを用いて (1) 式であらわされる相対的 T 微分散乱断面積の測定を行なった。

Fig 2 に実験装置のブロック図を示す。使用した N_2 気体レーザは自作の同軸型励起の構造を有し、共振波長 3371 \AA 、共振時間幅約 10 nsec 、線返し周波数最大 50 pps 、最大ピーク出力 45 kW の特性を有するが、測定に当ってはレーザの安定性を得るために、線返し周波数 25 pps 、ピーク

出力約 20 kW で動作させている。

N_2 レーザは 3371 \AA の共振線の他に数本の強い蛍光線が存在する。これらの線によって励起されるレイリー線は 3371 \AA の共振線により励起されるラマン線よりも強いため、これらの蛍光線は取り除かなくてはならない。

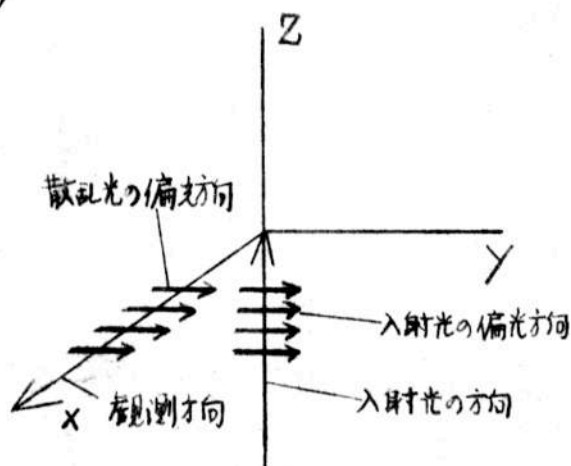
このためのフィルタとしてここでは Fig 1 励起及び観測方向の構成

ブレス波長 3000 \AA の回折格子

を用いている。回折格子で反射された1次の回折光は偏光子を通じて散乱セルと散乱光学系中に導かれる。また、2次の回折光は信号処理回路の参照光として用いられる。

散乱光学系はレーザ光及び散乱光を集光するための2枚の凸レンズと、両者の光を反射させ、受光量を多くするための2枚の凹面鏡とから成っている。

散乱光集光レンズを通った散乱光は検光子と、レイリー線を切るためのフィルタを通して分光器のスリット上に集光される。散乱光は光電子増倍管(以下PMと略)で受光され、検出系に



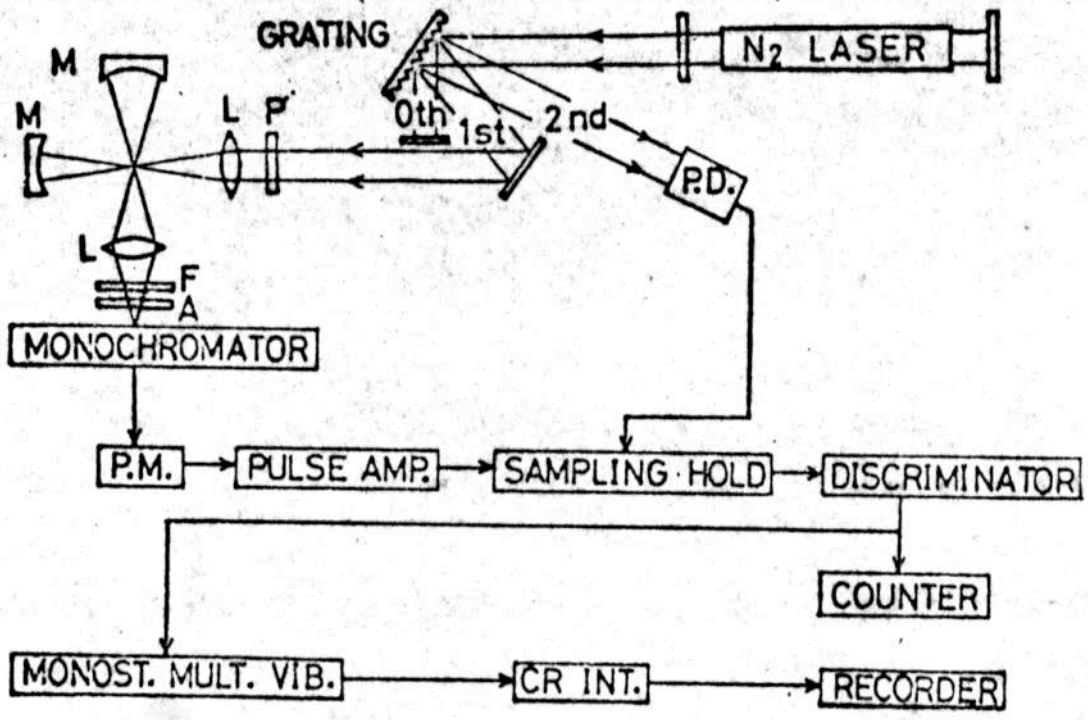


図2 ハルス・ラマン光を用いた実験装置のブロック図

導かれる。

PMで受光された散乱光は信号処理装置で処理されるが、極微弱なハルス光を信号処理する方法としては現在のところ、信号をアナログ的に処理するボックス積分法と、デジタル的に処理するハルス光子計数法とが考えられるが、S/Nや測定精度、表示の容易さ等を考慮して、我々は後者を採用している。Fig.3にこれらの極微弱ハルス光検出法のブロック図を示す。

次に微分ラマン散乱断面積の測定結果について述べる。

Table 1に N_2 分子を基準とする、14種類の気体分子の相対的Raman微分散乱断面積の測定値を示す。Table 1中のQの記号は N_2 分子のQブランチと被測定分子のQブランチの値を比較した値であり、その他は全ブランチ同士の比較である。

またTable 1には可視の連続光を励起光源とする過去の測定結果も同時に示してある(2~9)。

我々の測定では光学系及び検出系の波長感度の校正はEOA社製標準ランプ(L-101)で行なっているが、測定に

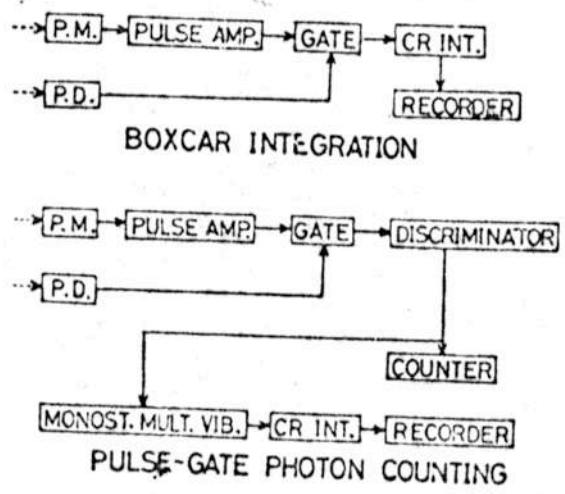


Fig.3 2種の極微弱ハルス光の信号処理法

MOLECULE	VIB. FREQ. (cm^{-1})	THIS WORK (3371Å)	MURPHY (4358Å)	LEONARD (3371Å)	FOUCHE (5145Å)	PENNEY (5145Å)
CCl ₄	459	7.7	7.4	-	-	-
NO ₂ (ν_2) (ν_1)	750	7.2	..	-	-	-
	1320	15	-	-	-	-
SF ₆	775	3.4	3.5	-	-	-
C ₆ H ₆ (ν_2) (ν_1)	991	11.8	12.2	-	-	-
	3070	10.1 (Q)	10.4	-	-	-
SO ₂	1150	5.7 (Q)	-	-	-	-
		4.9	-	2.4	5.0	-
CO ₂ (2 ν_2) (ν_1)	1286	0.84(Q)	0.86(Q)	-	-	-
		1.1	0.9	-	1.4	-
	1388	1.2 (Q)	1.2(Q)	-	-	1.4 (Q)
		1.3	1.4	-	1.2	-
O ₂	1556	1.4 (Q)	1.2(Q)	-	-	1.1 (Q)
		1.4	1.4	-	1.2	-
NO	1877	0.46(Q)	-	0.5	0.53	0.44(Q)
CO	2145	0.90(Q)	0.92(Q)	-	0.91	0.97(Q)
N ₂	2331	1* (Q)	1* (Q)	-	-	1* (Q)
		1**	1**	1**	1**	-
CH ₃ OH(ν_2) (2 ν_6)	2846	3.9	4.0	-	-	-
	2955	2.1	2.2	-	-	-
CH ₄ (ν_1) (ν_3)	2914	7.5 (Q)	7.3 (Q)	-	8.4	8.1 (Q)
	3020	1.2 (Q)	1.1 (Q)	-	0.47	-
C ₂ H ₅ OH	2943	5.5	-	-	-	2.8 (Q)
H ₂ O	3652	1.6	-	-	-	-
H ₂	4160	3.2 (Q)	3.1	-	2.6	-

* $d\sigma/d\Omega = 2.8 \times 10^{-30} \text{ cm}^2 \text{str.}^{-1}$ (Q-branch only)

** $d\sigma/d\Omega = 3.4 \times 10^{-30} \text{ cm}^2 \text{str.}^{-1}$ (Total)

Table 2 励起波長 3371Å における各種気体の微分ラマン散乱断面積の N₂ 分子に対する相対値の比較

ける誤差は N_2 レーザの出力変動や光学系、検出系の波長感度の較正における誤差、レーザ処理における誤差を総合して 10% 程度である。また Fig 1 に示す Murphy⁶⁾ と Fouch⁷⁾ の値の誤差は 10% Leonard⁸⁾ の値では 20% Penney⁹⁾ の値では 5~10% 程度である。

可視光を光源とする、過去の測定結果と比較すると、測定誤差範囲内ではほぼ良く一致しており、紫外域の光源を利用したことによる共鳴効果は観測されていない。しかし NO_2 については他のレーザと比較してかなり大きな値を示すことや、励起光の波長が NO_2 の吸収域に入っていることなどから考え、共鳴効果が起きているものと考えられる。

3 ラマン・スキャットル分布

Fig 4 に、測定した気体分子のラマン・スキャットルの例を示す。Fig 4-a は N_2 分子、Fig 4-b は CO_2 分子についての振動・回転ラマン・スキャットルである。これらの図から分かるように、室温では多くの回転準位に分子が存在しているため、振動・回転ラマン・スキャットルには多数のスキャットル線が分布している。例えば N_2 分子の場合には他の 2 原子分子とほぼ同じく 400 cm^{-1} 程度のスキャットル幅があり、 CO_2 の場合には 300 cm^{-1} 程度狭まっている。

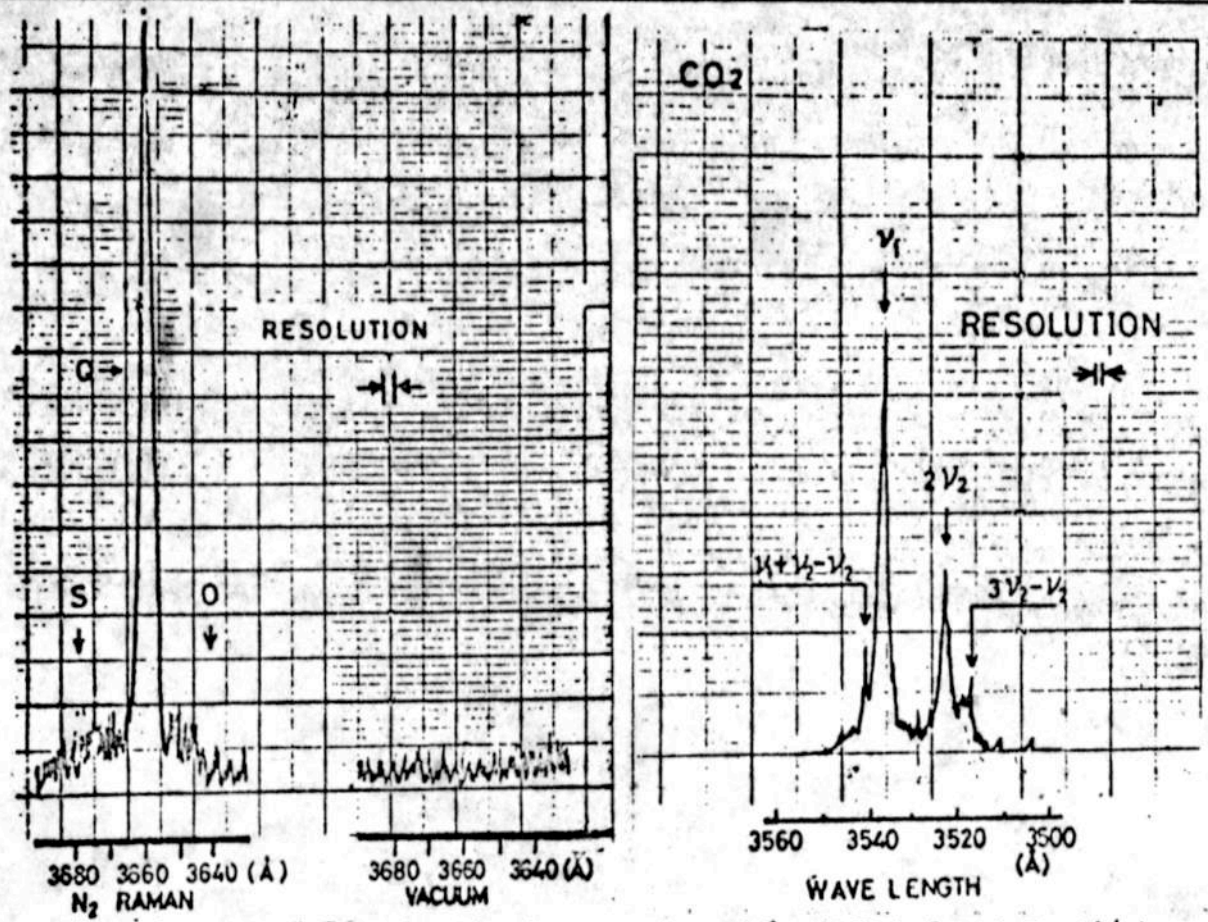
Fig 5 に混合気体で観測されるラマン散乱スキャットル分布の例として、燃料ガスのラマン散乱係数についての計算結果を示す。横軸は N_2 レーザ光からのラマン周波数シフトを与え、縦軸には各分子の体積散乱係数 $\beta = N \langle \sigma^2 / d\Omega \rangle$ (N は粒子数) の N_2 分子に対する相対値を示してある。ただし、この混合気体では、各分子の密度 (分圧) の一例として、 $N(N_2) = 0.80$ $N(CO_2) = 0.10$ $N(H_2O) = 0.07$ $N(O_2) = N(CO) = 10^{-2}$ $N(NO_2) = 10^{-4}$ 。その他の分子では $N = 1 \times 10^{-3}$ (単位: 気圧) を仮定している。

Fig 5 から N_2 O_2 CO_2 などの主要分子成分と、他の微量分子成分のスキャットルの重なりによる干渉効果や、分光素子の最大透過帯域幅および迷光遮断の必要条件などの検討を行おうとすることができよう。

4 検出可能分子密度と測定可能距離の検討

レーザ・ラマン・レーザを実用化するに当り、検出可能分子密度と測定可能距離の検討が必要である。

Fig 2 に現在、レーザ・ラマン・レーザのレーザ光源として利



a) N₂ ガスの ラマン・ストロクトルとノイズレベル(右)

b) CO₂ ガスの ラマン・ストロクトル

Fig 4 気体分子のラマン・ストロクトル

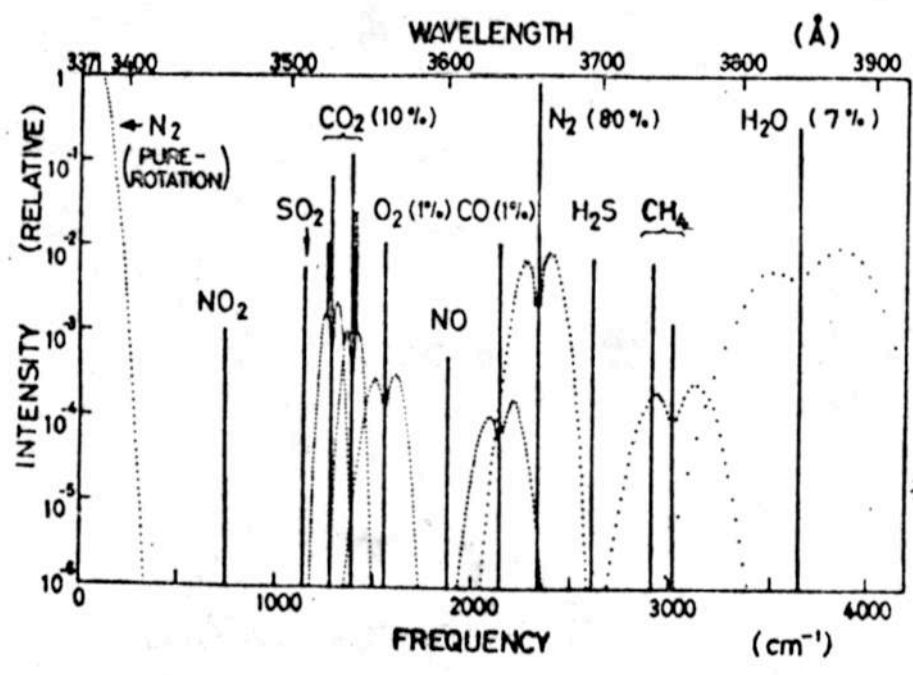


Fig 5 排煙中の各種分子のラマン散乱係数のスペクトル分布

レーザー	Ruby	Nd-YAG SH	Ruby SH	N ₂ Gas
波長 (Å)	6943	5320	3472	3371
出力エネルギー (mJ/Pulse)	300	30	50	0.8
繰返し周波数 (pps)	1	100	1	100

Table 2 レーザの特性比較

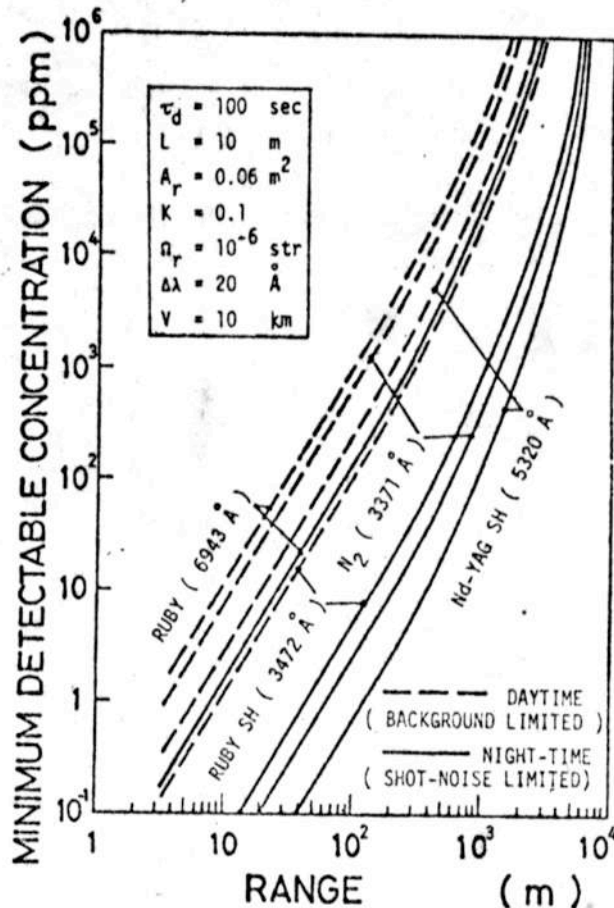


Fig 6 各種レーザーによるレーザー・ラマン・レーザ装置の最小検出可能密度の距離依存性の比較

用で、しかも製作が入手可能な4種類のレーザーの特性を示す。また Fig 6 にこれらのレーザーを用いる際の、距離に対する最小検出感度を示す。最小検出感度の計算に於て用いたパラメータの数値例は我々の実験装置でたやすく実現される値であり、観測汚染物偵知としては SO₂ を考えている。

Fig 6 にはそれぞれ夜間と日中における最小検出感度を示すが、これによると、日中動作では紫外域で尖頭出力の高いルビーレーザーのオ₂高調波が発振器として優れており、夜間動作では平均出力が大きい Nd-YAG レーザのオ₂高調波が最も優れていることがわかる。

5. レーザ・ラマン・レーザの動作実験

前節までに述べた、レーザー・ラマン・レーザの基本的パラメータの考察に基づいて、レーザー・ラマン・レーザの動作実験を試みた。

励起光源としては、散乱断面積の測定に用いた N₂ レーザを使用した。

動作実験は、約 30 m 離れた地点で、煙突から排出した燃焼排ガスにレーザー・ビームを照射して行なった。その結果として得られた種々の状態の大気中のガスからのラマン散乱スイトルの値を Fig 7 に示す。Fig 7 から求めらるる排煙中の濃度と Table 3 に示す。

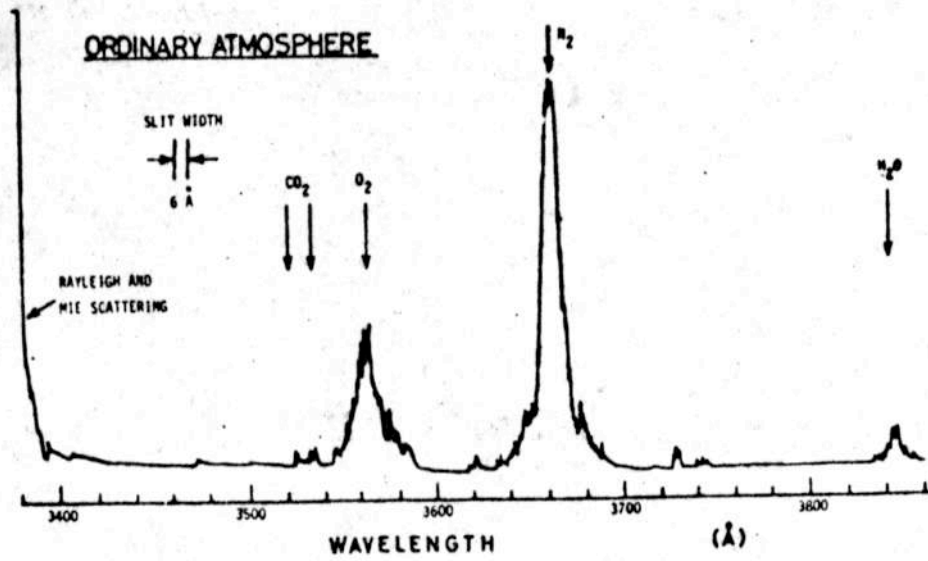


Fig 7(a) 通常の大気からのラマン散乱とレーリーおよびミー散乱のスペクトル

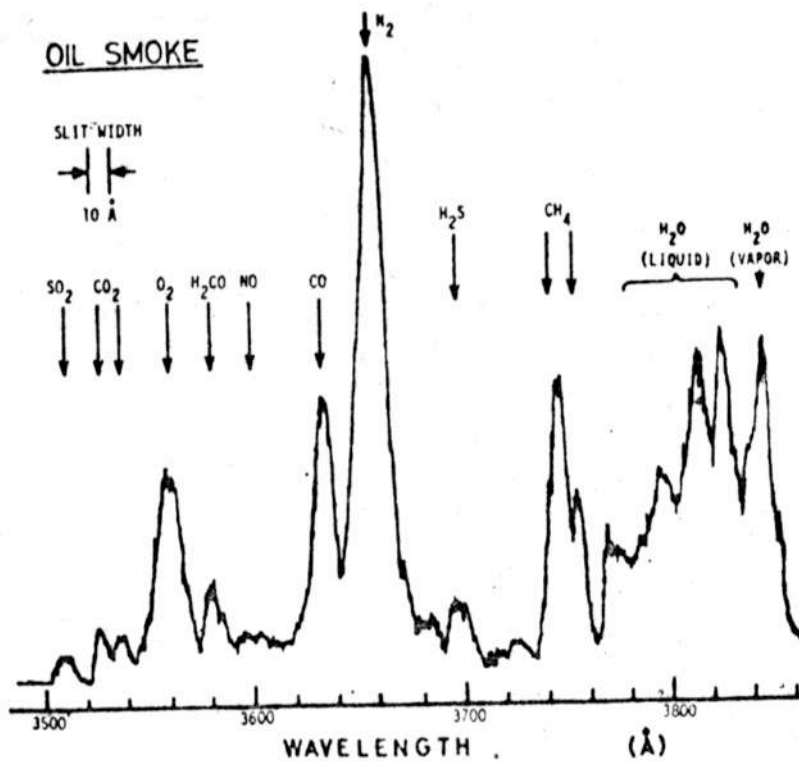


Fig 7(b) 灯油燃焼による排煙中の分子のラマン散乱スペクトル

AUTOMOBILE EXHAUST GAS

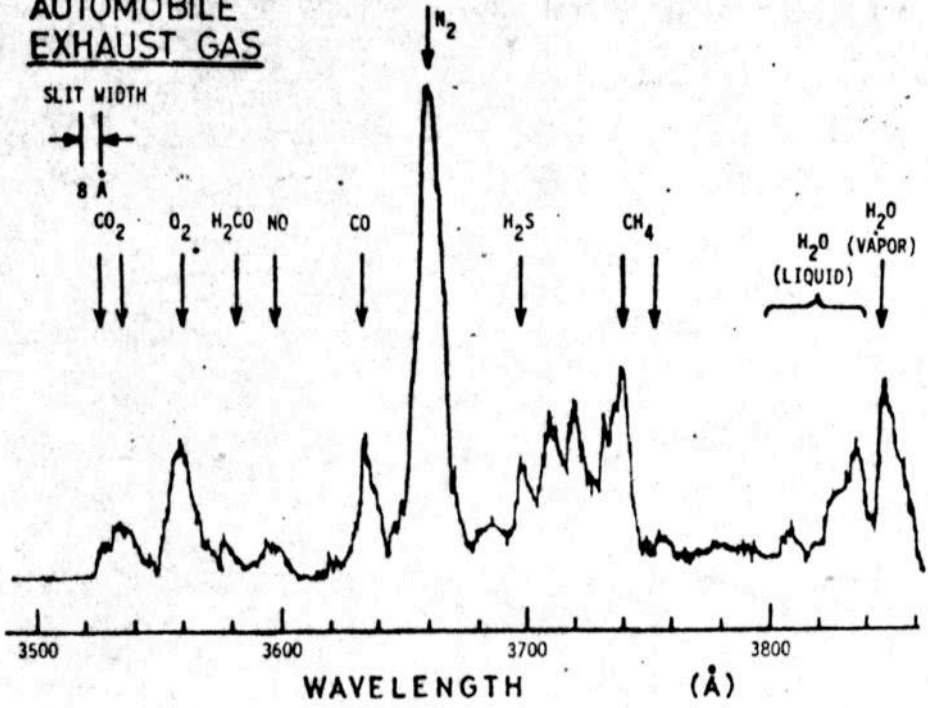


Fig 7(c) 自動車排気ガス中の分子のラマン散乱スペクトル

Table 3. 図7.8.9における分子密度の換算値 (N2分子密度に対する相対値)

MOLECULE	SO ₂	CO ₂	O ₂	H ₂ CO	NO	CO	N ₂	H ₂ S	CH ₄	H ₂ O (Liq.)	H ₂ O (Vap.)
Fig.7 (正体大気)		0.02	0.26				1				0.016
Fig.8 (灯油燃焼ガス)	0.01	0.06	0.24	(0.12)	(0.03)	0.43	1	0.015	0.069	0.11	0.10
Fig.9 (自動車排気ガス)		0.11	0.21	(0.04)	(0.09)	0.28	1	0.024	0.057	0.049	0.071

6 について

本ではレーザ・ラマンレーザの基本的な原理として、まずN₂分子を基準とするラマン散乱断面積の測定を行なった。これが大気汚染で問題となるほとんどの気体及び蒸気に対するラマン散乱断面積の情報を得ることができた。

また、大気汚染に関係する混合ガスのラマンシフト分布についての考察から、精度良く汚染物質の濃度測定を行うためには、ラマンシフトの干渉効果や、分散素子の透過率特性に注意して装置を設計することが必要であることが示された。

さらに、レーザ・ラマンレーザ装置の検出感度の考察を行なった。その結果、現在我々が比較的容易に手に入ることが出来る装置で、一例として1Kmの距離における数100ppmの分子濃度の測定が可能であることが判った。さらに装置を改良することにより、1桁程度の感度の向上は期待でき、汚染源となる比較高濃度の排煙の遠隔的分析や、大気中の水蒸気やCO₂の三次元的分布の測定には十分使用できるとの結論を得た。

文献 1) H. Inaba and T. Kobayashi, Nature 229 170 (1969)
 2) T. Kobayashi and H. Inaba, Proc IEEE 57 10 (1970)
 3) 小林 和雄 電通学会量測研資料 QE-71-63
 4) 清水・小林和雄 電通学会量測研資料 QE-72-37
 5) G. Placzek, Handbuch der Radiologie Erich Marx, Leipzig Akademische Verlagsgesellschaft
 6) W. F. Murphy, W. Holzer and H. J. Bernstein, Can. J. Phys. 22 211 (1968)
 7) F. F. Fouché and R. K. Chang, Appl. Phys. Lett. 10 574 (1971)
 8) F. F. Fouché and R. K. Chang, Appl. Phys. Lett., 22 256 (1972)
 9) R. A. Leonard, J. Appl. Phys. 42 4328 (1970)
 10) C. M. Penney, L. M. Goldman and M. Lapp, Nature to be published