

可変波長色素レーザーによる高層大気成分の観測*

山中 千代衛**・山口 元太郎**・田中 紘 幸**
中井 貞 雄**・井沢 靖 和†・今川 哲 夫**

1. ま え が き

レーザー技術の向上と、微少光検出法の開発により、レーザー光散乱を利用した大気成分観測の試みがいろいろなされつつある。大出力ルビーレーザーを地上から送出し、その散乱光を検出する方法[1]や、小型、軽量の半導体レーザーをロケットに搭載し、上層の微粒子の密度、粒径分布を測定する方法[2]等がそれである。これらの方法では測定対象がおもに宇宙塵等の粒径のかなり大きい粒子に限られており、原子、分子、イオン等の密度分布の測定、種類の弁別は困難である。一方特定の原子、イオン等の検出法として、ラマンレーザー[3][4]、N₂ レーザ[5]による共鳴散乱を利用した方法が提案されているが、使用するレーザーの発振波長により測定対象が限定される。筆者らが手がけ最近注目をあびている有機色素を用いた色素レーザー[6~9]は元来ほぼ 100 Å の広いスペクトル幅を持つが、プリズム、回折格子、干渉フィルタ等をレーザー共振器内にそう入することにより、その発振波長を紫から赤外の全領域にわたり連続的に制御することができる。このような色素レーザーは共鳴散乱計測の光源として最適であり、散乱断面積が異常に大きいため、高層の微量の N₂、N₂⁺、O₂⁺、Na、K、Li、等の濃度分布を詳細に決定できる[10]。ここでは Na 蒸気に関する共鳴散乱の実験結果[11]と、共鳴散乱を利用したロケット搭載および地上からのレーザーレーダ実験についての検討結果を報告する。

2. 色素レーザーと発振波長の tuning

色素レーザーの励起方法は大きく分けて i) フラッシュランプによる励起、ii) ルビー、ガラスなどの Q スイッチレーザー光およびその高調波による励起にわけられる、第1表に筆者らの研究室で発振に成功した色素の種類とその発振波長を示す。このほかにも 3700 Å までの発振が報告されており、3700 Å~1 μ の全波長で発振可能である。

第1図にフラッシュランプ励起用のレーザーヘッドを示す。レーザー色素をポンプで循環させることによりレーザーセルを含めたレーザー液体の冷却が効果的で発振のくり返しを上げることができる。セルは内径 10 mm、長さ 16 cm、放電長 10 cm で、低インダクタンスコンデンサと同軸ランプにより、50 J の入力に対し発光半値幅 700 n sec を得た。

第2表にルビーレーザー励起、フラッシュランプ励起の場合の出力レーザーパルスの特性を示

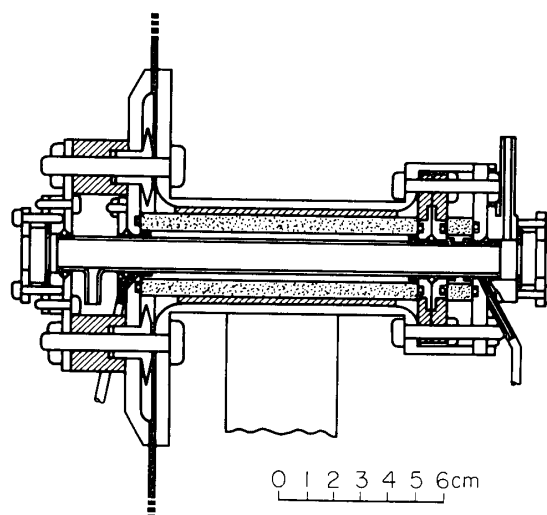
* 宇宙研特別事業費による研究論文

** 大阪大学工学部

† 現在、大阪府立工業奨励館

第1表 色素と発振波長

i) Qスイッチルビーレーザーによる励起		
1, 1'-ジエチル	2, 2'-トリカルボシアニンアイオダイド	8800~9000 Å
3, 3'-ジエチル	2, 2'-サイアトリカルボジアニン	7800~8400
3, 3'-ジエチル	2, 2'-オキサトリカルボシアニン	7100~7600
ii) フラッシュランプによる励起		
ローダミンB		5900~6500
ローダミンS		5900~6200
ローダミン6G		5700~6100
アクリジンレッド		5950~6150
エスキュリン		4500~4650
4-メチルアンベリフェロン		4400~4600



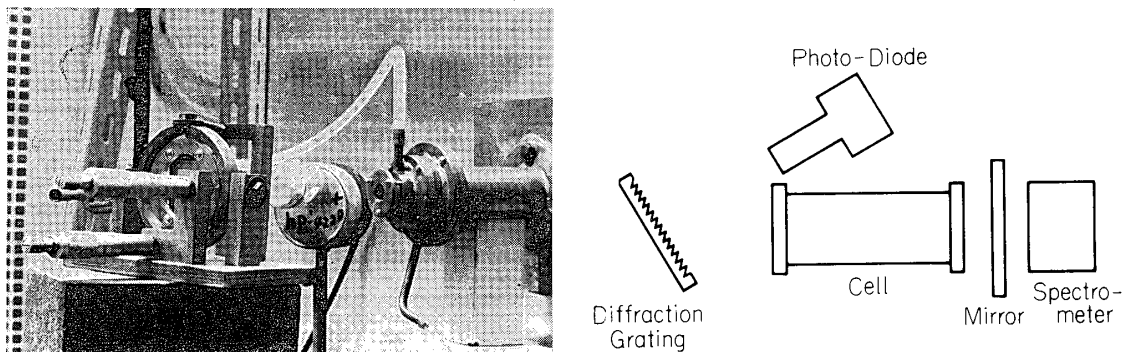
第1図 フラッシュ励起用レーザーヘッド

第2表 色素レーザーの特性

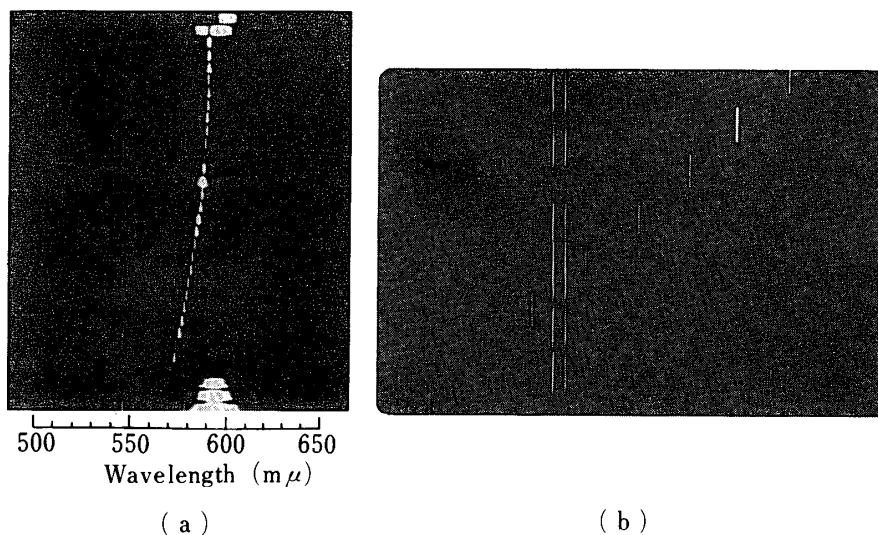
	ルビーレーザー光励起	フラッシュランプ励起
レーザー出力 (ピーク値)	1~20 MW	10 kW~1 MW
パルス幅	20 n sec	500 n sec
変換効率	20% (40~50% Max)	0.1%

す。出力として前者で 10 MW, 後者で 100 kW が容易に得られる。

色素レーザーで最も興味ある点は、発振波長と発振波長幅を自由に制御しうることである。レーザー共振器長と反射鏡の反射率を一定に保ち、色素の濃度を増すと、発振波長は長波長側へ移動する。これは再吸収によるものと考えられる。また共振器長を長くすることにより発振は短波長側に移動する。反射鏡の反射率を下げても同様のことが観測された。発振スペク



第 2 図 回折格子による Tuning



第 3 図 干渉フィルタ(a)および回折格子(b)による Tuning の効果

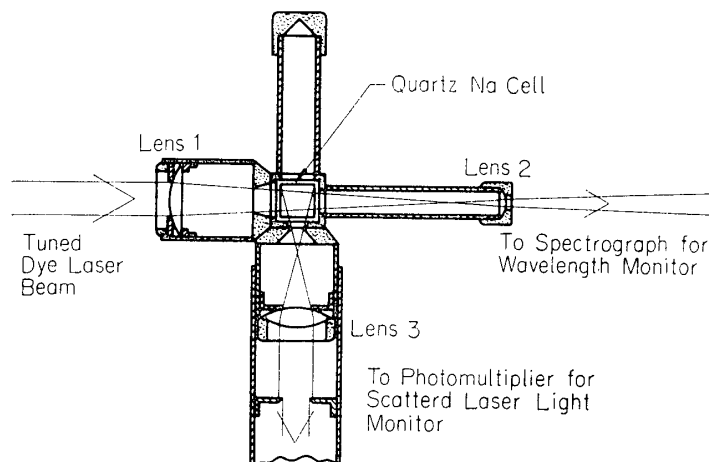
色素: ローダミン 6G メタノール溶液

参照光 a) Hg: 5460.7 Å

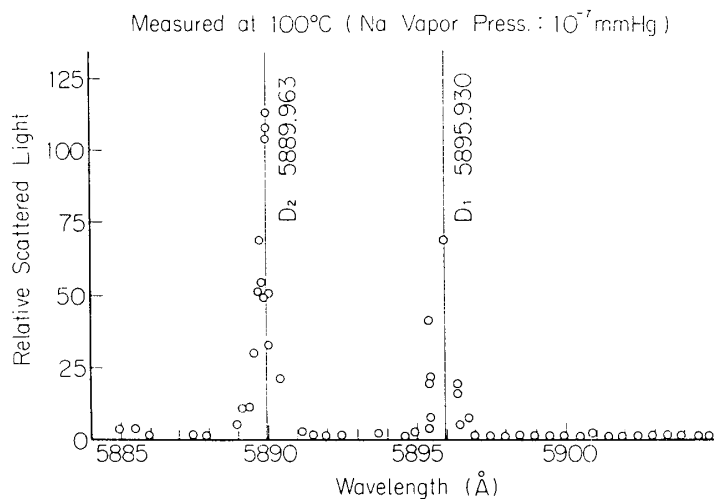
b) Na: D₁, D₂ 線

トル幅は一般に $100\sim 300\text{ \AA}$ と広いが, 共振器内にプリズム [8], 回折格子 [12][13], 干渉フィルタ等をそう入し, tuning を行なうことにより狭くすることができ, また任意の波長での発振が可能である.

第 2 図に回折格子を用いた tuning レーザ装置を示す. 用いた回折格子は 1350 Grooves/mm , 5000 \AA Blaze のもので, Littrow 配置とする. 色素溶液としてローダミン 6G のメタノール溶液 (10^{-4} mole/l) を用いたとき, 発振波長幅 0.1 \AA , 最大出力 100 kW のレーザー光が得られ, 発振波長を $5700\sim 6300\text{ \AA}$ にわたって連続して変えることができた. 第 3 図に干渉フィルタ (半値幅 50 \AA) と回折格子による tuning の様子を示した. スペクトル幅はプリズムで $2\sim 10\text{ \AA}$, 回折格子で 0.1 \AA , 干渉フィルタで 1 \AA 程度となる. 一般に tuning による出力の減少は 20% 程度にすぎず, 1 \AA あたりの出力は約 10^3 倍にもなる.



第4図 散乱チェンバ



第5図 Na 蒸気による共鳴散乱

3. Na による共鳴散乱

さきに述べたローダミン 6G の色素レーザを用いて Na の D 線の共鳴散乱を実測した。第4図に散乱チェンバを示す。石英セルは 10 mm 角で、空気圧 10^{-3} mmHg のもとで真中蒸留した Na を封入し、散乱チェンバ全体をヒータでくるみ、 $\pm 0.5^\circ\text{C}$ の温度調整を行なった。レーザ光の波長は分光器により 2nd order で分光写真をとり Na 標準ランプとの比較により決定した。

100°C における測定結果を第5図に示す。器壁の散乱の平均にくらべて 100 倍の共鳴散乱光が得られた。実験条件での Na の分圧は 10^{-7} mmHg ($\sim 10^9$ atoms/cm³) である。これより S/N が 100 程度もあるから下限として $10^7/\text{cm}^3$ 程度の粒子密度まで、簡単な散乱計測で検出可能である。この実験より明らかのごとく、Tuning 幅を狭くすることにより、レーザ共振器自体のエタロン作用にともなう発振スペクトルのシマ模様起因する散乱光のバ

ラツキが改善され、 0.1 \AA 幅のレーザ光を用いて、 0.01 \AA の共鳴線の観測が可能である。

4. 共鳴散乱による高層大気成分の検出

上述のように色素レーザは紫から赤外にわたる任意の波長で発振を行なわせるため、共鳴散乱の対象は数多くあるが、次のようなものが考えられる。

N_2^+	3528 \AA	3914 \AA	9180 \AA	He^+	6560 \AA
N_2^*	8912 \AA			Li	6707.9 \AA
NO^*	8704 \AA			Na	5889.95 \AA 5895.9 \AA
O_2^+	5973 \AA			K	7665 \AA 7698.9 \AA

地上 100 km 付近での共鳴散乱を対象とし、ロケット搭載実験と地上からのレーザレーダ実験にわけて考える。

4.1 ロケット搭載実験

送出レーザ光パワーを P_0 、受信散乱光パワーを P_r とすると次の関係が成り立つ。

$$\frac{P_r}{P_0} = \frac{KAT^2N\sigma}{R^2} \quad (1)$$

ここに K , A , T はそれぞれ送受信系の効率、受信面積、大気の透過率である。 N , σ は粒子密度および粒子 1 個あたりの散乱断面積であり、 R は送受信等と散乱対象との距離である。ロケット搭載の際の容量を考慮して、フラッシュランプ励起の色素レーザを用いるとし、出力 $P_0 \sim 100 \text{ kW}$ 、パルス幅 500 n sec と仮定する。また $T=K=1$, $A=100\pi \text{ cm}^2$ とし、レーザ・パルストレインの長さが 150 m であることを考え、送信系から 10~160 m の空間で散乱光を受信すると、 $P_r/P_0=0.29 N\sigma$ となる。

いま K 原子 $^2P_{1/2} \rightarrow ^2S_{1/2}$ (7699 \AA) の共鳴散乱を考える。送出レーザ光のスペクトル幅を 0.1 \AA とすると $\sigma \cong 2 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 \text{ sterad.}^{-1}$ であり、100 km 付近で $N_K=20 \text{ cm}^{-3}$ であるから

$$P_r \sim 10^{-7} \text{ W} \quad (2)$$

が得られる。検知器としてたとえば EMI 9684 B 光電子増倍管 (S-1 感度, 7699 \AA で量子効率: 0.3%, 電流増幅率: 2×10^6 , -160°C での陽極暗電流: $3 \times 10^{-11} \text{ Amp}$) を用いると、出力として 400 μA が得られる。これは光電子計数法を用いない普通の方法で測定可能である。

一方 N_2 分子による Rayleigh 散乱は $\sigma \sim 3 \times 10^{-24} \text{ cm}^2 \text{ sterad.}^{-1}$ (at 7699 \AA) であり、地上 100 km で $N_{N_2} \sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ とすると $P_r \sim 10^{-11} \text{ W}$ となる。送出レーザ光のスペクトル幅が広く、共鳴散乱への寄与が送出パワーの 1/10 程度であっても、K 原子による共鳴散乱の方がずっと大きく、十分識別可能である。

他の分子、イオン等についても同様の計算が行なえる。第 3 表に上と同じ条件での種々の対象に対する最小検知密度を示す。

次にロケット搭載用レーザヘッドについて考えてみる。現在電源も含めて総重量 5 kg であり、これをさらに軽量化することは可能である。現在使用している平板コンデンサ 1 m \times 2 m を円筒 (径 40 cm ϕ \times 長さ 40 cm) 状にまとめる予定にしている。電源容量としては 1

第3表 ロケット搭載実験によるイオン, 分子, 原子の最小検知密度
 送出レーザー光 100kW 0.5 μ sec, 受光面積 100 π cm²

対 象	波 長	散乱断面積 (cm ² sterad. ⁻¹)	最小検知密度 (cm. ⁻³)
N ₂ * 1st positive band	8912Å	~10 ⁻¹⁵	~10 ²
NO* b ⁴ Σ^- -a ⁴ Π_i	8704	10 ⁻¹³ ~10 ⁻¹⁴	15
K ² P _{1/2} - ¹ S _{1/2}	7690	2 \times 10 ⁻¹³	20
Na ² P _{3/2} - ² S _{1/2}	5890	3 \times 10 ⁻¹³	1
Na ⁺ 1st negative band	3914	7 \times 10 ⁻¹⁸	10 ⁴

回の放電エネルギー 30J 必要として, 乾電池 (単一 1.5V) 1個のエネルギー 10kJ (4 Ω 負荷で 500分, 最終 0.85V) だから 300回の発振が可能と考えられ, 見通しは明るい.

4.2 地上からのレーザーダ実験

地上設備では装置の容量が問題とならないため, 光源としてルビーレーザー励起の色素レーザーを考える. 発振のくり返しは1回/secまで容易である. この場合にも(1)式と同様の関係が成り立ち, $R=100$ km, 大気透過率 $T=0.5$, 受信望遠鏡面積 $A=400\pi$ cm² とすると, $P_r/P_o \sim 4 \times 10^{-9} N\sigma$ となる. 送出レーザーパワ $P_o=10$ MW, パルス幅 20n sec とすると $P_r \sim 4 \times 10^{-2} N\sigma$ が得られる.

一例として NO* b⁴ Σ^- -a⁴ Π_i ; 8704Å について考えてみる. $\sigma \sim 10^{-13} \sim 10^{-14}$ cm² [3] であり, $\sigma \sim 10^{-14}$ とすると, $P_r \sim 4 \times 10^{-16} N$ (Watt) が得られる. 高度分解能を 1.5km とすると測定時間は 10 μ sec ゆえ, $P_r \sim 1.7 \times 10^3$ N photons/sec = 1.7 \times 10⁻² N photons/10 μ sec となる. 光倍管の量子効率を 0.3% とすると光電面から出る光電子数 P_e は

$$P_e \sim 5 \times 10^{-5} N \text{ photoelectrons/10 } \mu \text{ sec} \quad (3)$$

となる. この程度の光強度では通常の測定法での検出は困難で, 光電子計数計測 [14] を採用する必要がある. m 回くり返しの測定を行なったときの信号対雑音比は,

$$\left(\frac{S}{N}\right)^2 = \frac{mP_e^2}{P_e + P_{be}}$$

で与えられる. ここに P_{be} は back ground noise による光電子数を示す. 光倍管の暗電流は無視し, P_{be} として夜光による寄与のみを考え, 20Å の干渉フィルタで除去したとすると, $P_{be} \sim 5 \times 10^{-2}$ photoelectrons/10 μ sec (at clear night) 程度となる. $S/N=5$, $m=100$ とすると必要な粒子数として $N \geq 6 \times 10^3$ cm⁻³, $m=16$ とすると $N \geq 3 \times 10^4$ cm⁻³ が得られる. 100km 付近での NO 密度として 10⁶~10⁷cm⁻³ が得られており, そのうち 10⁻³~10⁻⁴ 程度が NO* 状態にあれば測定可能であることがわかる.

第4表に種々の原子, 分子, イオンに対する最小検知密度を示す.

K 原子の場合 100km 付近で $N_K \sim 20$ cm⁻³ の密度では検出困難あるが, この方法は Na や K の人工雲による風の測定の際のように原子密度が大の場合には非常に有力な武器にな

第 4 表 レーザレーダによる最小検知密度

送出レーザ: 出力10MW, パルス幅 20 n sec
 光電子計数: くり返し100回, $S/N \sim 5$
 高度分解能: 1.5 km

対 象	波 長	最小検知密度 (cm^{-3})
N_2^*	8912Å	6×10^4
NO^*	8704	6×10^3
Na	5890	$\sim 10^2$
N_2^+	3914	2×10^5
K	7699	20 cm^{-3} では 困難

るものと思われる。

5. む す び

発振波長を任意に制御しうる色素レーザの出現により共鳴散乱の対象は大きく広がった。さらには、発振スペクトル幅が広いことを利用して、散乱光を分光し、共鳴散乱線を見いだすことにより、大気の組成を知ることにも可能である。現在、ロケット搭載用としてレーザ装置の小型化と、地上基地からのレーザレーダ用として複合増幅段付色素レーザの建設を進めている。

1969年12月20日

参 考 文 献

- [1] G. Fiocco and L. D. Smullin: Nature **199** (1963) 1275.
- [2] 山中, 中井, 北島, 井沢: 宇宙観測シンポ (1967.11)
- [3] L. J. Nugent: Nature **211** (1966) 1349.
- [4] 広野: 電波研季報 **10** (1964) 169.
- [5] R. A. Young: Disc. Farad. Soc. **37** (1964) 118.
- [6] 山口, 村川, 山中: 応用物理 **37** (1968) 346.
- [7] S. Murakawa, G. Yamaguchi, C. Yamanaka: Japan. J. Appl. Phys. **7** (1968) 681.
- [8] 村川, 田中, 山口, 山中: 電気関西連大 11-9 (1968)
- [9] G. Yamaguchi, S. Murakawa, C. Yamanaka: Appl. Phys. Letters **13** (1968) 134.
- [10] 山中, 山口, 井沢: 宇宙観測シンポ (1968.11)
- [11] 山中, 山口, 井沢, 村川, 田中: 電通学会量エレ研究会 QE 68-36 (1969.1)
- [12] B. H. Soffer *et al*: Appl. Phys. Letters **10** (1967) 266.
- [13] 山中, 山口, 今川, 田中: 電気関西連大 S7-6 (1969.11)
- [14] C. Yamanaka *et al.*: XI th Meeting of COSPAR a-12 (1968)
 Conf. on Laser Measurements U. R. S. I., Warsaw (1968)