

上層大気成分観測に用いる Dye Laser の特性*

広野求和**・内野 修**・牧野行雄**

1. ま え が き

さきに可視から近赤外の全域にわたって発振可能となった染料レーザーを利用して、種々の大気成分を共鳴散乱や吸収を利用して観測しうる可能性を指摘してきた[1]。しかし染料レーザーはもともと $100\sim 300\text{\AA}$ の発振スペクトル幅をもっているため、上記の方法で観測しようとする場合、スペクトルの狭帯域化と高出力化が問題となる。今回は Fabry-Perot etalon を用いて、Polymethine 染料の中で特に光変換効率の大きい DOTC iodide について、このような tuning の実験を行なったのでその結果を報告する。また $7200\sim 7850\text{\AA}$ の範囲で発振可能なこの染料を使って、 O_2 の Aバンドの吸収と流星金属元素の共鳴散乱の問題にもふれておく。

2. 染料レーザーとエタロンによる tuning

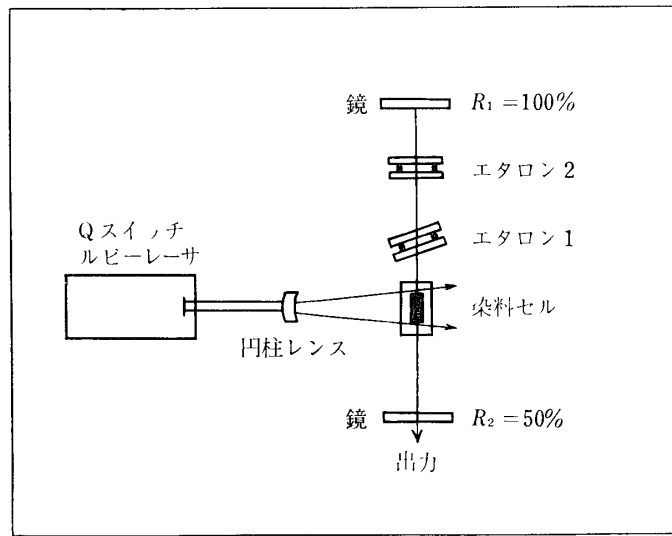
写真1にレーザー装置全体を示す。染料溶液が入るセルは発振方向に 3cm の長さをもつ直方体 ($3\times 1.5\times 1\text{cm}^3$) で両端面は $\lambda/2$ の平面度で光学研磨している。共振器は第1図のように平行に配置した二枚の平面鏡で構成される。共振器長 40cm 、反射鏡は誘電体多層膜鏡で、反射率 $R_1\approx 100\%$ 、 $R_2=50\%$ である。励起用ルビーレーザーは回転プリズムで Q スイッチされ、波長 6943\AA 、出力 1J/Pulse 、パルス幅約 40nsec のジャイアントパルスを生ずる。また水冷式で最大くりかえしは 5 秒に 1 回である。図にみられるように、ルビーレーザーの出



写真1 染料レーザー装置

* 宇宙研特別事業費による研究論文

** 九州大学理学部物理 (福岡市箱崎)



第 1 図 DYE LASER 配置図

カビームは円柱レンズによって帯状にひろげられた後セルに直角方向から入射する (transverse 形式).

写真 2 は DOTC iodide を Dimethyl Sulfoxide に溶かし、濃度を 10^{-6}mol/l から 10^{-4}mol/l まで変化させたときの発振スペクトルを回折格子 (Narumi RM 23) を用いて赤外フィルム上に撮ったものである. reference は Ne の 1st order である. 発振波形はルビーレーザーの波形とほとんど同じで単一三角波に近い (写真 3)

写真 2 からわかるように $7200\sim 7850\text{\AA}$ の間で発振可能であるが、スペクトル幅は $100\sim 300\text{\AA}$ にも及ぶ. しかしこの波長幅は現在の目的には広すぎるので狭帯域化が必要である.

宮副ら[2]は、回折格子 1440 本/mm のレプリカを入れて狭帯域発振の実験を行なったが、出力が 10mJ に達したときに格子が破損したためそれ以上の実験は続行できなかった. ここでは第 2 図のごとく Fabry-Perot etalon を共振器中にそう入して狭帯域化を試みた.

エタロンは平行面の間隔を d とし、光軸となす角を θ とすれば、つぎの波長で最大透過率をもつフィルタとなる.

$$n\lambda_n = 2d\cos\theta \quad (n \text{ は整数}) \quad (1)$$

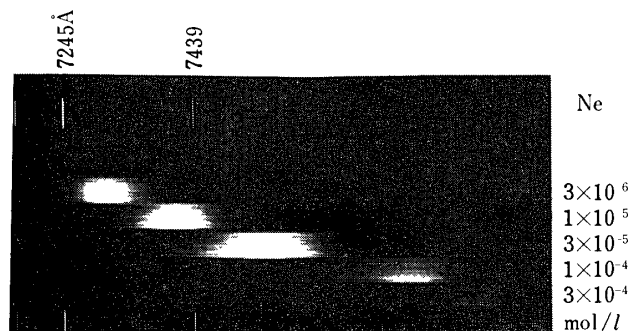
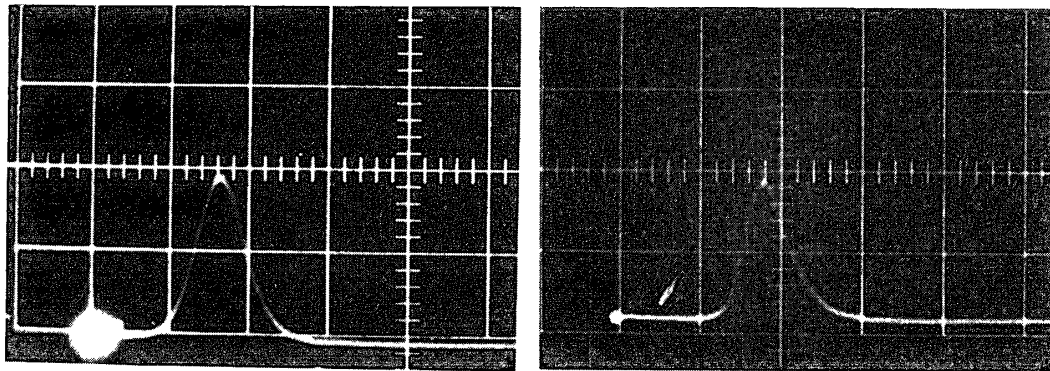


写真 2 濃度変化に対する発振スペクトル

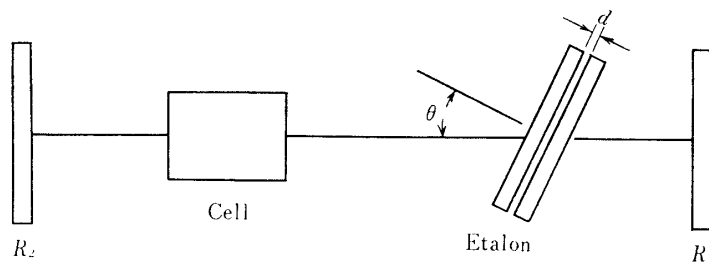


ルビーレーザーの発振波形

染料レーザーの発振波形

掃引速度：50nsec/div

写真 3



第2図 エタロンによる tuning

n の大きな値に対し最大透過波長間隔 (free spectral range) は

$$\lambda_n - \lambda_{n+1} = \lambda/n \quad (2)$$

であり, pass band の半値幅は

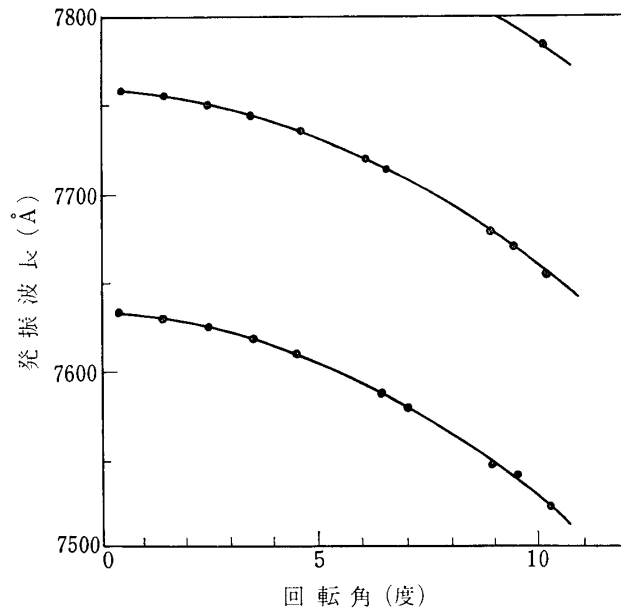
$$(\Delta\lambda) = \lambda/nF \quad (3)$$

$$\text{ここで } F \approx \frac{\pi(R)^{1/2}}{1-R}, R \text{ 反射率}$$

使用したエタロンは面精度 $\lambda/20$, $R=50\%$ で誘電体多層膜蒸着をしてある. スペーサの厚さ d は, $d_1=20\mu\text{m}$, $d_2=150\mu\text{m}$ の2枚で, それぞれ free spectral range は 7700\AA で (2)式によればだいたい 150\AA , 40\AA になる.

第3図はエタロン d_1 の角度 θ を変えたとき生じる発振波長の変化を示したもので, θ が増大すると λ は減少する.

写真4は $8 \times 10^{-4} \text{mol/l}$ のとき, エタロンを順次加えていったときのスペクトルの様子で, そのときの波長幅と出力の結果は表1のごとくである. エネルギーはサーモパイル (TRG 108) で測定した. 写真のように各帯域のエネルギーは二つがほとんど等しくほかが小さいこともあるし, またほかの場合一つが著しく大きいこともある. この表から波長幅がもとの約 $1/100$ になったとき, 約 $1/2$ の出力が得られ大半のエネルギーは狭い帯域の中に集中して発振していることがわかる. またエタロンを一枚付加するごとに もとのエネルギーの 70%



第 3 図

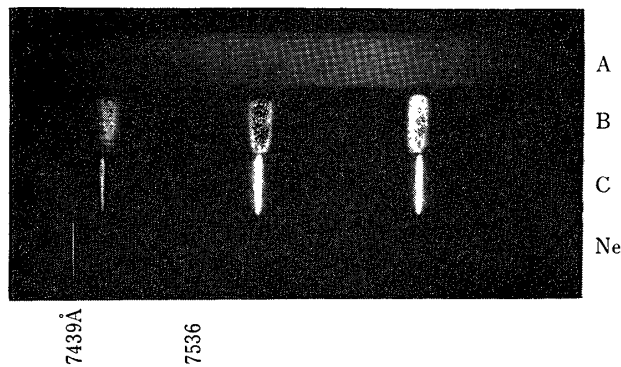


写真 4 エタロンによる tuning

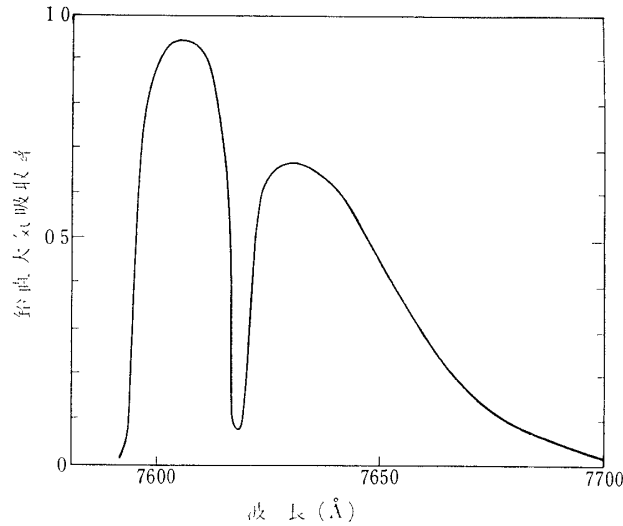
表 1

	エタロン	波長幅 (Å)	出力 (mJ)
A	なし	300	120
B	$d_1(20\mu\text{m})$	15	85
C	$d_1(20\mu\text{m})$ $+d_2(150\mu\text{m})$	4	56

ぐらいが発振に寄与している。そこでスペーサの厚さをうまく選ぶことと同時に、さらにエタロンをもう一枚付加してほとんど一つの帯域にエネルギーが集中するようにすれば、波長幅が 1\AA 程度で 30mJ ぐらいの出力が得られそうである。Gibson ら[3]が共鳴散乱による Na の観測に用いているのは、フラッシュ・ランプ方式で 1.5\AA の幅で 3mJ の出力であることを想起すれば、現在の方法によりこの 10 倍ぐらいのパルスエネルギーが得られることになる。

3. O₂ の A バンドによる吸収

今の染料で得られる発振波長と数 Å のスペクトル幅をもつレーザーで、吸収を利用して観測しうるものに O₂ の A バンドと H₂O (7230 Å 付近と 7326 Å 付近) とがある. O₂ の A バンドは第4図のような吸収バンドを生じている.



第4図 鉛直に大気を通過したときに O₂ によってうける吸収率の波長による変化

今 λ_1 は A バンドによる吸収をうけず, λ_2 は吸収をうけるものとする. λ_1 と λ_2 に対する諸量をそれぞれ suffix 1 と 2 で表わすことにするとレーザー・レーダ方程式は

$$W_{R1} = W_{T1} T_1^2 (N_1 \rho_1) \frac{S_R}{h^2} \Delta h \quad (4)$$

$$W_{R2} = W_{T2} T_2^2 (N_2 \rho_2) \frac{S_R}{h^2} \Delta h \quad (5)$$

W_{R1}, W_{R2} 受信エネルギー

W_{T1}, W_{T2} 送信パルスエネルギー

$h, \Delta h$ 後方散乱の生じる高さとその範囲

S_R 受信望遠鏡有効断面積

ρ_1, ρ_2 レーダ後方散乱微分断面積

ρ_U, ρ_M を分子とエアロゾルの同断面積とすれば

$$N_1 \rho_1 = N_U \rho_{U1} + N_M \rho_{M1}, \quad N_1 \rho_2 = N_U \rho_{U2} + N_M \rho_{M2} \quad (6)$$

$$N_1 = N_U + N_M (N_1 \approx N_U) \quad (7)$$

N_U と N_M は分子とエアロゾルの個数密度

T_1 と T_2 は透過率であって σ_1, σ_2 を散乱断面積, σ_{O2} を酸素分子による吸収断面積とすると,

$$T_1 = \exp \left\{ - \int_0^h N_2 \sigma_2 dh \right\} \quad (8)$$

$$T_2 = \exp \left\{ - \int_0^h N_1 \sigma_2 dh - \int_0^h N_{02} \sigma_{02} dh \right\}$$

N_{02} は酸素分子の個数密度であり

$$N_1 \sigma_1 = N_U \sigma_{U1} + N_M \sigma_{M1} \quad (9)$$

$$N_1 \sigma_2 = N_U \sigma_{U2} + N_M \sigma_{M2}$$

(4)、(5)より

$$W_{R2}/W_{R1} = (W_{T2}/W_{T1}) P(h) \exp \left\{ -2 \int_0^h N_{02} \sigma_{02} dh \right\} \quad (10)$$

$$\text{ここに } P(h) = \frac{\rho_2}{\rho_1} \exp \left\{ -2 \int_0^h N_1 (\sigma_2 - \sigma_1) dh \right\} \approx 1 \quad (11)$$

$$\text{である。 } W_{R2}/W_{R1} = R(h) \quad (12)$$

とおけば、酸素分子の個数密度は

$$N_{02}(h) = \frac{1}{2\sigma_{02}} \left\{ \frac{R(h)}{P(h)} \right\} \frac{d \left\{ \frac{P(h)}{R(h)} \right\}}{dh} \quad (13)$$

誤差伝ばの理論によれば、 N_{02} 、 P 、 R の平均誤差をそれぞれ ε 、 ε_P 、 ε_R とすれば

$$\frac{\varepsilon}{N_{02}} = \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_P}{P} \right)^2 + \left(\frac{\varepsilon_R}{R} \right)^2} \quad (14)$$

となる。(13)式より酸素分子の高さ分布がわかり、またエアロゾルの高さ分布もわかるはずだから、上層大気成分をレーザレーダによって観測する際地表から 30km の高さまでにあるエアロゾル層の Mie 散乱による障害を克服できそうである。 λ_1 として 7590 Å 付近、 λ_2 として 7647 Å 付近の tuning はすでに得られている。

4. 流星金属元素による共鳴散乱

Narcisi[4], Ferguson *et al.*[5], Swider [6]らはロケットに搭載された質量分析器により流星に起因すると思われる金属元素イオンを観測した結果を調査しているが、これらの結果によればスポラディック E 層 (E_s) 出現と金属元素の存在との間には密接な関係が見いだされる。また Wind shear によるスポラディック E 層生成の理論においても金属イオンの存在が予想されている。そこでさらに、もう一枚エタロンを共振器中に加えることによって発振帯域を 1 Å 程度におさえることにより、さらにその第二高調波をとることも併せ用いて共鳴散乱による流星金属原子の観測可能性について述べる。

有効共鳴散乱断面積 σ_{eff} は

$$\sigma_{\text{eff}} = \frac{1}{\Delta \lambda_L} \frac{\pi e^2}{mc} \lambda_0^2 f_{12} \quad (15)$$

e と m は電子の電荷 (*e. s. u.*) と質量、

c : 光速、 f_{12} : 振動子強度、

$\Delta \lambda_L$ はレーザ光の波長幅で λ_0 は中心波長である。

表 2

原 子	個数密度 $n[\text{cm}^{-3}]$	波 長 [\AA]	σ_{eff} [10^{-15}cm^2]	$\frac{\eta T^2 n \sigma_{\text{eff}}}{(\eta T^2 n \sigma_{\text{eff}})_{\text{Na}}}$
(NaI) _{quiet}	1.0 (3)	5890	146	1
KI	0.43(4)	7699	184	0.54
FeI	0.85(6)	3720	7.08	51.1
"	"	3860	4.54	40.8
CrI	0.94(4)	3579	25.9	1.63
"	"	3593	22.9	1.44
"	"	3605	16.4	1.14

ここで $\Delta\lambda_L=1\text{\AA}$ を仮定し NBS Monograph に与えられた f_{12} の値を用いたときの値を表 2 に示す.

スボラディク E 層の出現しているとき, 高さ 100km 付近の金属イオンの個数密度は Fe などについては観測値が得られる. 中性原子イオンの個数密度の比 $[M]/[M^+]$ の見積りについては 1~50 とされているが確実な値はまだ得られていないので一応この比を 50 として中性原子の密度を算出し, 各種金属原子の密度の比は Swider の採用した組成にもとづいて計算した. 観測の難易を決めるためには受信装置の光電子増倍管の光電面量子効率も重要な量である. これを η とし共鳴線各波長における値を用い, それに該当する元素の個数密度を n とし $\eta T^2 n \sigma_{\text{eff}}$ の積を計算し, 静穏日の 100km の高さ付近にある Na についても $(\eta T^2 n \sigma_{\text{eff}})_{\text{Na}}$ ただし $[\text{Na}]=10^3/\text{cm}^3$ として計算し $\eta T^2 h \sigma_{\text{eff}}/(\eta T^2 n \sigma_{\text{eff}})_{\text{Na}}$ の比も表 2 に表示した. ここで T は大気鉛直方向の透過率である[7]. この比は上層大気中の Na を観測するのと同じエネルギーのパルスを打ち上げた場合 Na のときに比して何倍のエネルギーのパルス光として受信されるかを示してある.

5. む す び

上層大気成分観測に用いる有機染料レーザーの tuning にエタロンは大変有用なようである. ポリメチン染料の中の DOTC iodide に対しエタロンを二枚用いたとき, 波長幅 4\AA , パルスの時間幅 40nsec 出力約 56mJ が得られた. この程度の波長幅で吸収を利用して観測可能なものとして O_2 の Aバンド (7600\AA 付近), H_2O (7230\AA 付近と 7326\AA 付近) がある. またスペーサをうまく選ぶと同時に, エタロンをもう一枚付加することによって 1\AA 程度の波長幅にすれば, 共鳴散乱で流星金属原子 KI(7699\AA) が, さらに第二高調波を使えば, FeI(3720\AA , 3860\AA), CrI(3579\AA , 3593\AA , 3605\AA) などが観測可能となる. さらに分子イオンの中 N_2II (3914\AA) もこの波長範囲にはいつてくる.

Gibson ら[3]が共鳴散乱による超高層大気中の Na の観測に成功した場合に用いた染料レーザーの出力が 1.5\AA の幅で 3mJ であることを想起すれば現在の方法によればこの約 10 倍の出力が得られることになる. しかし, くり返し大出力の発振を行なう場合の染料溶液の安定性を確立するためにはさらに研究を進める必要があり, また超高層の観測には送信機の出力は大きいほどよいので, より大きな出力を発振する装置が開発されることも望ましいこと

である。

最後に染料レーザーの実験を進めるにあたって終始ご教示とご援助をいただいた九大工学部、宮副 泰教授と前田三男博士に感謝します。

1971年1月14日

参 考 文 献

- [1] 広野求和, 内野修, 牧野行雄. 中間圏・電離圏大気力学とエネルギー収支に関するシンポジウム報告, 203 (1970).
- [2] 宮副泰, 前田三男: 九大工学部集報 **42**, 390 (1969).
- [3] M. R. Bowman, A. J. Gibson and M. C. Sandford: *Nature*, **221**, 456 (1969).
- [4] R. S. Narcisi: *Space Res.* **8**, 360 (1968).
- [5] E. E. Ferguson *et al*: *JGR.*, **73**, 6215 (1968).
- [6] W. Swider, J.: *Planet. Space Sci.* **17**, 1233 (1969).
- [7] L. Elterman: *Atmospheric Attenuation Model, 1964 in the Ultraviolet, Visible and Infrared Regions for Altitudes to 50km.* AFCRL-64-740 (1964).