

大気微量成分測定用赤外レーザヘテロダイン分光計の開発*

石津美津雄**・板部 敏和**・有賀 規**

(1987年5月28日受理)

Development of Laser Heterodyne Radiometer for Monitor-Atmospheric Minor Constituents

By

Mitsuo Ishizu, Toshikazu Itabe and Tadashi Aruga

Abstract: Laser heterodyne radiometers using a CO₂ laser and a Pb-sault diode laser as local oscillators have been developed for detecting stratospheric minor constituents such as ozone and sulfur-bearing compunds. Because of very low concentration of the latter gases in the stratosphere, it is required that the radiometer has the near quantum limited sensitivity and is capable of operation at the stratospheric altitude for limb-scanning of the atmosphere to the sun. Considering this requirement, we obtained the best design of the beam combining optics between signal and local laser beams, so that the measured system sensitivities of our CO₂ laser and diode laser heterodyne radiometers have attained to be as high as NEP/B = 1.7×10^{-19} W/Hz and 5.9×10^{-19} W/Hz, which are only 8.1 and 29 times the quantum noise level, respectively. A number of absorption lines including stratospheric ozone lines have been successfully measured by a ground-based observation of the solar radiation at 9.6 μm wavelength. An airborne laser heterodyne radiometer using the same technique will be developed in future.

* 宇宙研特別事業費による研究論文

** 郵政省電波研究所

1. はじめに

地球大気は、 N_2 , O_2 , Ar , H_2O を主成分に、希ガス、 CO_2 , O_3 , 硫黄化合物、窒素化合物、ハロカーボン、有機化合物等の微量成分が0.04%程度含まれている。このうち、存在量の多い CO_2 と O_3 は温室効果によって地球の気候を生物の生存に適した温度に保ち、さらに O_3 は波長0.3μm以下の太陽紫外線を吸収して生物を保護する重要な物質である。しかし、1950年代以後、産業活動の大規模化に供ない、化石燃料やハロカーボン類の大量消費が進み、大気中に蓄積されて、微量成分のバランスが崩れつつあることが認識されている。特に、成層圏の O_3 は、1970年代にSST輸送機の排ガスに含まれるNO成分を触媒とする解離反応で減少することが危惧されたが、現在は、ハロカーボンによる反応が新たな問題になってきた。実際、中緯度帯では大気中全コラム量が減少傾向を示すデータがあり[1]南極成層圏の O_3 層もこの数年、オゾンホールと呼ばれる春期の大きな減少を示している[2]。また、火山噴煙や化石燃料の排ガス中の硫黄化合物は、大気中酸化反応で硫酸化して地表に落下し、酸性雨を生じる。成層圏に侵入した部分は硫酸エアロゾルになり、長期間浮遊して日射を遮り、気候の寒冷化をもたらす。

このように、微量成分の変化は地球環境を大きく変動させる要因になるので、存在量の変化の測定は、大気中の化学反応を解明し、将来の傾向を予測して大気中放出許容量を把握するために必要である。 O_3 はその重要性から、早くからオゾンゾンデや地上、および、衛星搭載の分光計により、かなり正確に量や分布が測定されてきた。しかし、硫黄化合物やハロカーボンはサンプリング法による直接的測定でしか調べられていない[3]。直接測定は局所データしか得られず、地球規模の資料を得るためにには、地表から高層大気にわたる多数の観測点が必要になる。

ところで、大気微量成分をはじめとする多原子成分は、赤外波長域に振動回転準位間遷移に基づく多数の吸収スペクトルがあり、詳しく調査されている。従って、高分解能赤外分光法を応用したりモートセンシングによれば、分子の同定、定量が出来るだけでなく、地上で高層大気にまでわたる情報が得られる。利用可能な分光法は、高感度であることも希薄濃度を検出するために必要なので、フーリエ変換分光とレーザヘテロダイン分光がある。前者は成層圏高度に於る振動回転スペクトルを十分に分離できる 0.01 cm^{-1} (30MHz)の分解能があり、微量成分の同定と全コラム量が測定できる。後者は、さらに高い 0.0001 cm^{-1} (3MHz)の分解能が得られ、スペクトル線の形状まで測定できる。これから成分ごとの濃度の高度分布を得ることが可能になる。ヘテロダイン分光計の開発は、このほか天体大気分光も目的として米国では、NASA/Goddard Space Flight Center, NASA/Langley Research Center, MIT大学等で[4]、我国では当所のほか東北大学理学部で進められている。これまでに大気成分で検出された分子は、 CO_2 レーザを局発光源に使用した大気球搭載分光計で ClO を[5]、赤外半導体レーザを使用した分光計で、 O_3 [6], NH_3 [7], H_2O [8], HNO_3 [8], N_2O [10]がある。天体大気では、火星と金星の CO_2 スペクトル[11]、太陽黒点の SiO スペクトル[12]が検出されている。

我々の研究の目的は、成層圏微量成分のなかでも特に、サンプリング法でしか測定され

ていない硫黄化合物の検出である。これらの気体はエアロゾルに変換される反応が速く、濃度は非常に低い。そのため、100 Km 以上の測定光路長が必要になり、大気球に搭載してリムスキャンを行うことを予定している。これまでに半導体レーザのヘテロダイン分光計を航空機に搭載した例はなく、実現には、極端な環境で安定に作動する装置を開発する必要がある。しかし、小型航空機搭載の対流圏オゾン測定用の CO₂ レーザヘテロダイン装置 [13] や CO₂ レーザレーダ装置 [14] を開発した経験が我々にあり、半導体レーザも单一モード発振出来るようになっている [15] ので、搭載用装置の開発は十分可能である。本報告では、ヘテロダイン分光の原理と、これまでに開発した CO₂ レーザと半導体レーザを使用したヘテロダイン分光計システム、および、分光結果を紹介する。

2. レーザヘテロダイン分光の原理

レーザヘテロダイン検波の特徴は、レーザ光の発振波長幅まで到達できる高い分解能と、理論上限である量子限界の感度が、同時に得られることにある [16]。そのため、直接検波では、背景光雑音のため十分な S/N が得られない場合でも、高い S/N を期待できる。

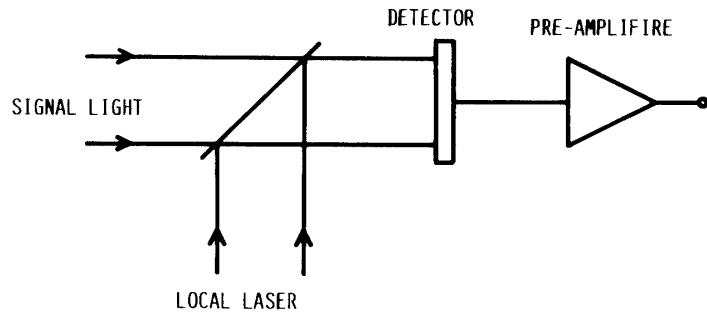
ヘテロダイン検波の特性を導くため、第1図のような光ミキサに、ビームスプリッタを含む適当な光学系により局発レーザと信号光が同時に入射しているとする。これらの光の電場ベクトルを、それぞれ、 \mathbf{E}_s , \mathbf{E}_L , その和を $\mathbf{E}_T = \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_L$, 磁場に対しても同様に定義する。ミキサに発生する光電流 $i(t)$ は、ポインティングベクトルを用いて、

$$i(t) = \frac{e\eta}{h\nu} \int_D \frac{1}{2} \operatorname{Re}(\mathbf{E}_T \times \mathbf{H}_T^*) \cdot d\mathbf{s} \quad (1)$$

ここで、 e は素電荷、 $h\nu$ は光子エネルギー、 η はミキサの量子効率であり、積分はミキサの有効面 D 内で行う。簡単のため、光はそれぞれ平面波として、 $\mathbf{E}_T(t)$ の複素振幅を $E_T(t)$ とすれば、さらに、

$$i(t) = \frac{1}{2} e\gamma E_T(t) E_T^*(t) \quad (2)$$

ここで、 $\gamma = c\epsilon\eta D/h\nu$, c は光速度、 ϵ は空間の誘電率である。光電流のパワースペクトル $P_i(\omega)$ を求めるには、Weiner-Khinchine の定理を用いて



第1図 レーザヘテロダイン検波の基本構成

$$P_i(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} \overline{i(t)i(t+\tau)} d\tau \quad (3)$$

光電流の自己相関関数の時間平均のフーリエ変換となる。ところで、光電流は Poisson 過程で生じる電子正孔対で流れるから、デルタ関数 $\delta(t)$ を用いて次のように表わせる。

$$i(t) = e \sum_k \delta(t + t_k)$$

これを用いて $\overline{i(t)i(t+\tau)}$ を計算すると、

$$\begin{aligned} \overline{i(t)i(t+\tau)} &= e \overline{i(t)} \delta(\tau) + i(t) \overline{i(t+\tau)}_{\tau=0} \\ &= \frac{1}{2} e^2 \gamma \overline{E_r(t) E_r^*(t)} \delta(\tau) + \frac{1}{4} e^2 \gamma^2 \overline{E_r(t) E_r^*(t) E_r(t+\tau) E_r^*(t+\tau)}_{\tau=0} \end{aligned} \quad (4)$$

となる。右辺第 1 項は $E_s(t)$ と $E_L(t)$ が独立事象であることから、次のようになる。

$$\begin{aligned} &\frac{1}{2} e^2 \gamma \{ \overline{E_s(t) E_s^*(t)} + \overline{E_L(t) E_L^*(t)} \} \delta(\tau) \\ &= e(i_s + i_L) \delta(\tau) \end{aligned} \quad (5)$$

ここで i_s, i_L は、それぞれ、信号光、局号光で生じる直流電流で、光電力を P_s, P_L とすれば

$$\begin{aligned} i_s &= \frac{1}{2} e \gamma \overline{E_s(t) E_s^*(t)} = \frac{e \eta}{h \nu} P_s \\ i_L &= \frac{1}{2} e \gamma \overline{E_L(t) E_L^*(t)} = \frac{e \eta}{h \nu} P_L \end{aligned} \quad (6)$$

となる。第 2 項も同様に、

$$\begin{aligned} &\frac{1}{4} e^2 \gamma^2 \{ \overline{E_s(t) E_s^*(t) E_s(t+\tau) E_s^*(t+\tau)} + \overline{E_L(t) E_L^*(t) E_L(t+\tau) E_L^*(t+\tau)} \\ &+ \overline{E_s(t) E_s^*(t) E_L(t+\tau) E_L^*(t+\tau)} + \overline{E_L(t) E_L^*(t) E_s(t+\tau) E_s^*(t+\tau)} \\ &+ \overline{E_s(t) E_L^*(t) E_s(t+\tau) E_L^*(t+\tau)} + C.C. \\ &+ \overline{E_s(t) E_L^*(t) E_L(t+\tau) E_s^*(t+\tau)} + C.C. \} \\ &= (i_s + i_L)^2 + 4 e^2 \gamma^2 \{ R_e(E_s(t)) R_e(E_s(t+\tau)) R_e(E_L(t)) R_e(E_L(t+\tau)) \} \end{aligned} \quad (7)$$

パワースペクトル $P_i(\omega)$ は、(5), (7)を(3)式へ代入すれば得られる。(7)の第 2 項の

積分がヘテロダイン成分を与える、これは、電場の複素振幅の実数部分をとる記号を省略して表わせば、

$$\begin{aligned}
 & \frac{2}{\pi} e^2 \gamma^2 \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} \overline{E_s(t) E_s(t+\tau) E_L(t) E_L(t+\tau)} d\tau \\
 &= \frac{1}{\pi^2} e^2 \gamma^2 \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\tau-\tau')\Omega} e^{i\omega\tau'} \overline{E_s(t) E_s(t+\tau) E_L(t) E_L(t+\tau')} d\Omega d\tau' d\tau \\
 &= 4e^2 \gamma^2 \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\Omega\tau} \overline{E_s(t) E_s(t+\tau)} d\tau \right\} \left\{ \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\omega-\Omega)\tau'} \overline{E_L(t) E_L(t+\tau')} d\tau' \right\} d\Omega \\
 &= i_s d_L \int_{-\infty}^{\infty} P_s(\Omega) P_L(\omega - \Omega) d\Omega
 \end{aligned}$$

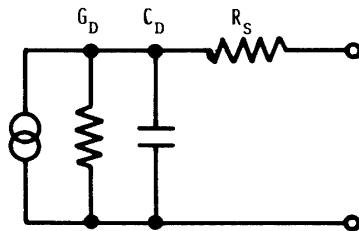
ここで、 $P_s(\omega)$ と $P_L(\omega)$ は信号光と局発光の規格化パワースペクトルで、ヘテロダイン信号のスペクトルは、両者のコンボルーションで与えられる。従って $P_i(\omega)$ は、

$$P_i(\omega) = \frac{e}{2\pi} (i_s + i_L) + (i_s + i_L)^2 \delta(\omega) + \frac{i_s i_L}{2\pi} P_s(\omega) * P_L(\omega)$$

となる。この式で ω は正負の領域にあるので、通常の正の領域にとり、ミキサの飽和電流 i_{SAT} と、ミキサの等価回路を第2図のように考えて、その熱雑音と増幅器雑音も加えると、最終的に、

$$\begin{aligned}
 P_i(\omega) &= (i_{SAT} + i_s + i_L)^2 \delta(\omega) + \frac{e}{\pi} (i_{SAT} + i_s + i_L) \\
 &+ \frac{R}{\pi} (T_M + T_A) \{ G_D (1 - G_D R_S) + \omega^2 C_D^2 R_S \} \\
 &+ \frac{1}{\pi} i_s i_L P_s(\omega) * P_L(\omega)
 \end{aligned} \tag{8}$$

が得られる。ここで T_M はミキサの温度、 T_A は増幅器の雑音温度である。この式の第1項はミキサに流れる全直流電流、第2項はこれに比例して発生するショット雑音、第3項は熱雑音である。(8)式からヘテロダイン検波の S/N 比と、単位帯域幅あたりの入力換算雑



第2図 光ミキサの等価回路

音 NEP/B が、それぞれ次のように求まる。

$$\frac{S}{N} = \frac{\eta}{h\nu} P_s(\omega) * P_L(\omega) / [1 + (i_{SAT} + i_s)/i_L + 2k(T_M + T_A)/i_L \{G_D(1 - G_D R_S + \omega^2 C_D R_S^2)\}] \quad (9)$$

$$\frac{NEP}{B} = \frac{h\nu}{\eta} [1 + (i_{SAT} + i_s)/i_L + 2k(T_M + T_A)/i_L \{G_D(1 - G_D R_S + \omega^2 C_D^2 R_S^2)\}] \quad (10)$$

(10)式から局発光が十分強く、局発ショット雑音が他の雑音より十分卓越すれば、ミキサは量子効率だけで決まる最高感度に達することがわかる(量子限界)。

ここまで光学系の特性を無視して感度を求めたが、実際にはここで検波効率の低下を生じる。これをヘテロダイン効率 η_H と呼び、光学系の特性、光源、伝播媒質の状態に対して種々の計算がされている[17]—[19]。ここでは光学系に関する一般的な式を導き、その応用例を示す。

簡単のためミキサは量子限界にあたるとし、信号は単色波とする。ヘテロダイン電流 $i_n(t)$ は、式(1)にもどって、

$$i_n(t) = \frac{c\varepsilon e\eta}{h\nu} \int_D \frac{1}{2} \{ \mathbf{E}_s(t) \mathbf{E}_L^*(t) + C.C. \} ds$$

となる。 $\mathbf{E}_s(t)$ と $\mathbf{E}_L(t)$ の空間振幅部分を、 E_s と E_L を振幅最大値として、それぞれ、 $E_s U_s(\mathbf{r})$ 、 $E_L U_L(\mathbf{r})$ とおくと、さらに、

$$i_n(t) = \frac{c\varepsilon e\eta}{h\nu} E_s E_L \int_D \{ R_e(U_s(\mathbf{r}) U_L^*(\mathbf{r}) \cos \omega t - I_m(U_s(\mathbf{r}) U_L^*(\mathbf{r}) \sin \omega t) \} ds \quad (11)$$

となる。ここで、(6)式の信号と局発の光電力を、光学系に入射する量に定義し直すと、ミキサに入射する電力は結合係数 η_0 、 η_L を用いて、それぞれ、

$$P_s \eta_0 = c\varepsilon \int_D \frac{1}{2} \mathbf{E}_s \cdot \mathbf{E}_s^* ds = \frac{c\varepsilon}{2} E_s^2 \int_D |U_s|^2 ds \quad (12)$$

$$P_L \eta_L = c\varepsilon \int_D \frac{1}{2} \mathbf{E}_L \cdot \mathbf{E}_L^* ds = \frac{c\varepsilon}{2} E_L^2 \int_D |U_L|^2 ds$$

となる。ヘテロダイン信号の S/N 比は、(11)式の二乗平均をショット雑音電力 $2e i_L$ で割れば得られて、(12)式を用いると、

$$\frac{S}{N} = \frac{\eta}{h\nu} \frac{c^2 \varepsilon^2 E_s^2 E_L^2}{P_L \eta_L} [\{ \int_D R_e(U_s U_L^*) ds \}^2 + \{ \int_D I_m(U_s U_L^*) ds \}^2]$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{\eta}{h\nu} P_s [\{\int_D R_e(U_s U_L^*) ds\}^2 + \{\int_D I_m(U_s U_L^*) ds\}^2] / \{\int^\infty |U_s|^2 ds \\
 &\quad \times \int_D |U_L|^2 ds\}
 \end{aligned} \tag{13}$$

となる。ここで η_0 は次の関係を用いた。

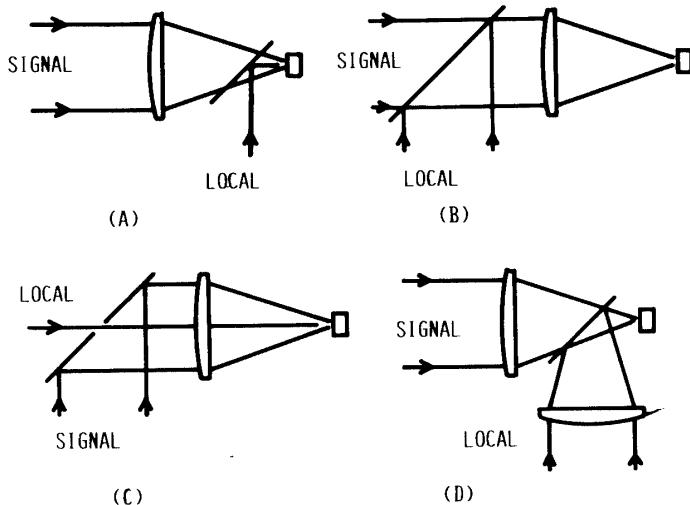
$$\eta_0 = \int_D |U_s|^2 ds / \int^\infty |U_s|^2 ds$$

(13)式と(9)式を比較すると、信号電力 P_s を光学系入射電力に置き直したため、光の振幅分布に関する項が付加わったことになる。これを η_H とすれば、感度は $NEP/B = h\nu/\eta\eta_0\eta_H$ となり、

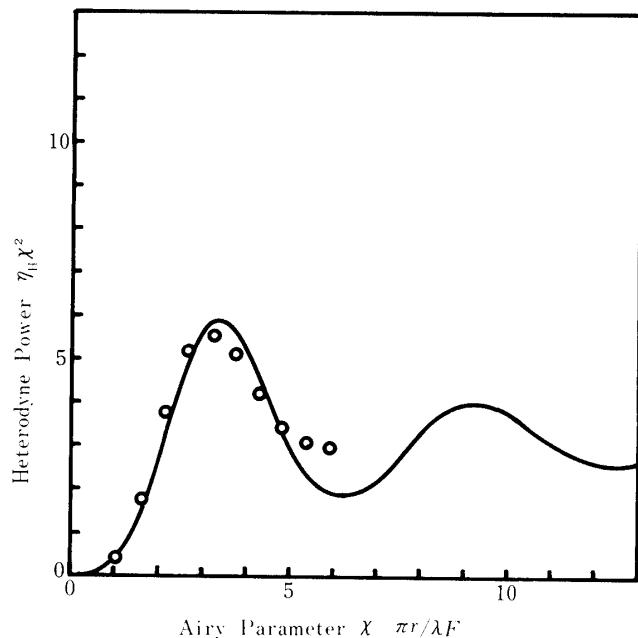
$$\begin{aligned}
 \eta_H &= [\{\int_D R_e(U_s U_L^*) ds\}^2 + \{\int_D I_m(U_s U_L^*) ds\}^2] / \{\int^\infty |U_s|^2 ds \\
 &\quad \times \int_D |U_L|^2 ds\}
 \end{aligned} \tag{14}$$

である。この式は複素振幅で表わされているので、それぞれの光の波面がミキサの有効面に対して、傾いたり、湾曲している場合にも適用できる一般化された式である。

波面合成の実際の光学系は、第3図に示すように各種の方法が考えられる。最も単純な図中(a)の方法は、集光系で生じる信号光のエアリー波面と、局発光の平面波の重ね合わせである。半径 r の円形の有効面、又は、これに外接する正方形の有効面を有するミキサ



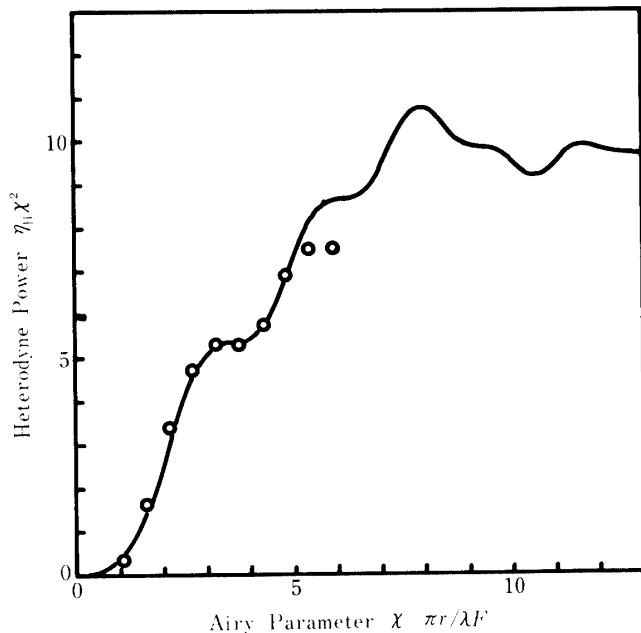
第3図 信号光と局発光の波面合成法
(a)エアリー-平面波, (b)平面-平面波, (c)平面-ガウス波, (d)エアリー-エアリー波



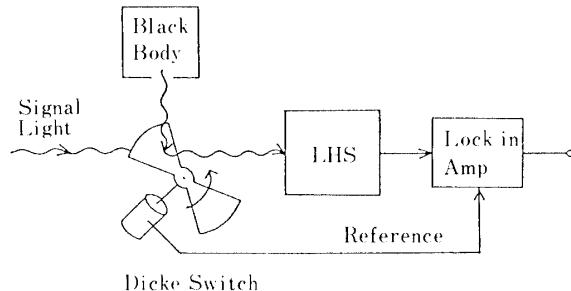
第4図 ヘテロダイン信号強度の光学系寸法法による変化特性ミキサは集光系焦点面上にある。実線は理論値、白丸は実測値。

が、信号光の焦点にある場合、半径 r 、又は、集光系の明るさ F を変えて、ヘテロダイン信号強度を(14)式から計算した結果と実験の結果(第5図の実験と同一条件)を第4図に示す。横軸はエアリーパラメータ、 $x = \pi r / \lambda F$ であり、縦軸は信号強度に比例する量として $\eta_h \chi^2$ にした。信号強度には極大、極小点があり、ミキサの大きさがエリマーの暗線リングに一致することに対応する。最大信号強度は、ミキサが第1暗線リングと一致するときで、アンテナ有効面積が λ^2 になるアンテナ理論の結果と等しい。

しかし、この光学系はエアリー中心スポットの信号光しか利用できず、効率が低いのが欠点である。これを改良するには、一般的の分光光学系に用いられるような、適当なアポダライゼーションを行なえば、波面合成功率が上昇するはずである。検討の結果、最も簡単で有効な方法は、ミキサを焦点面から適当な距離だけ離すことが判明した。ミキサの最良位置における計算と実験の結果を、第5図に示す。実験は $200\text{ }\mu\text{m}$ 角のミキサと CO_2 レーザ、グローバ光源を用い、集光系は口径 45 mm 、焦点距離 218 mm の ZnSe 二枚組レンズを用いた。エアリーパラメータはレンズに絞りを入れて変化させた。計算では第2明線リングの光まで有効利用でき、信号強度は第4図の場合の 1.8 倍に増加する。実験は第4図と同一光学系を用い、154 波長だけミキサを移動した。レンズの口径が小さいために、理論最大値までのデータは得られていない。また、収差のために端のデータは計算値からはずれている。しかし、第1明線リングの光を有効利用できることが、明瞭に示されていて、アポダライゼーションが有効であることが確認できた。これは測定 S/N 比を少しでも高く得たい大気微量成分の測定では、非常に有効である。



第5図 ヘテロダイン信号強度の光学系寸法による変化特性
ミキサは集光系焦点面から154波長ずれている。



第6図 ディッケ型レーザヘテロダイン分光計

一般的な回折限界の視野の光学系にもどり、温度 T_s の光源からの光を、一様な吸収層を通して検出する時の、S/N 比を求める。信号源の輝度 B_r は、プランクの輻射公式から、

$$B_r = \frac{2h\nu^3}{c^2} \left\{ \frac{\exp(-\alpha L)}{\exp(h\nu/kT_s) - 1} + \frac{1 - \exp(-\alpha L)}{\exp(h\nu/kT_g) - 1} \right\} \quad (15)$$

である。ここで、 T_g 、 α 、 L はそれぞれ吸収層の温度、吸収係数、厚さである。信号光強度 P_s は光の偏波とアンテナ理論を考慮し、局発周波数の両側の信号光周波数成分を合計して、

$$P_s = 2h\nu B \left\{ \frac{\exp(-\alpha L)}{\exp(h\nu/RT_s) - 1} + \frac{1 - \exp(-\alpha L)}{\exp(h\nu/RT_g) - 1} \right\} \quad (16)$$

となる。 B は IF 帯域幅で、この範囲内では輝度と吸収の波長依存性はないとした。このような信号をヘテロダイン検波するには、装置の非線型性や不安定性を小さくするため、第6図のように信号光と参照光を交互に切換えるディツケ型分光計にするのが普通である。その測定時定数を τ とすれば、量子限界感度のヘテロダイン分光計の感度 NEP は、

$$\text{NEP} = \frac{h\nu}{\eta\eta_0\eta_H} \sqrt{B/\tau} \quad (17)$$

となる。このような装置で得られる S/N 比は、(16), (17)式から

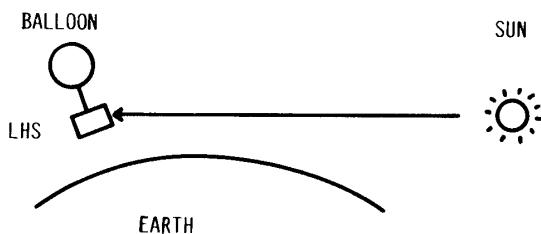
$$\frac{S}{N} = 2\eta\eta_0\eta_H \sqrt{B\tau} \left\{ \frac{\exp(-\alpha L)}{\exp(h\nu/kT_s) - 1} + \frac{1 - \exp(-\alpha L)}{\exp(h\nu/kT_g) - 1} \right\} \quad (18)$$

となる。分光計の感度は、温度の知られている黒体光源の光を受信して、その S/N 比から感度を求められることも判る。例として、太陽の波長 $10 \mu\text{m}$ の光を信号にし、大気吸収を無視すれば、 $T_s = 5000\text{K}$ なので、 $P_r = 1.2 \times 10^{-19} \text{ W/Hz}$ となる。これは、毎秒、単位 IF 帯域幅あたり 6 個の光子を受信することになる。分光計の性能として、 $B = 10 \text{ MHz}$, $\tau = 1 \text{ sec}$, $\eta\eta_0\eta_H = 0.6 \times 0.5 \times 0.7$ とすれば、 $S/N \sim 3800$ 程度の信号が得られる。実際には大気吸収と散乱で、この半分以下になるのが普通である。

我々の目標にしている成層圏硫黄化合物のうち、OCS 分子の検出感度を(18)式から求めよう。この分子は硫黄成分のうちでは最も高濃度であるが、測定されたサンプリング値は、高度 20 Km で $110 \sim 170 \text{ pptv}$ で非常に微量である。そのため、第7図に示すように大気球に分光計を搭載し、 20 Km 以上の高度からほぼ水平方向に大気中を通過して来る太陽光を分光する(リムスキャン)。この方法は $100 \sim 500 \text{ Km}$ の長光路測定が出来ること、高度分布の重み関数が非常に鋭いので、インバージョンを計算しなくても、太陽追尾による天頂角変化だけで高度分布が得られる特徴がある[15]。従って吸収スペクトルの形を精密に測定する必要はない。

OCS 分子の赤外吸収は 850 cm^{-1} にあり、吸収線強度は $S = 0.3 \text{ atm}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ 、大気圧による衝突拡がり係数は、 $\alpha_L = 0.1 \text{ atm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ である。OCS の分圧を P 、大気圧を P_A として、吸収係数 α は吸収中心波長で次の式で表わせる。

$$\alpha = \frac{S}{\pi\alpha_L} \cdot \frac{P}{P_A} \quad (19)$$

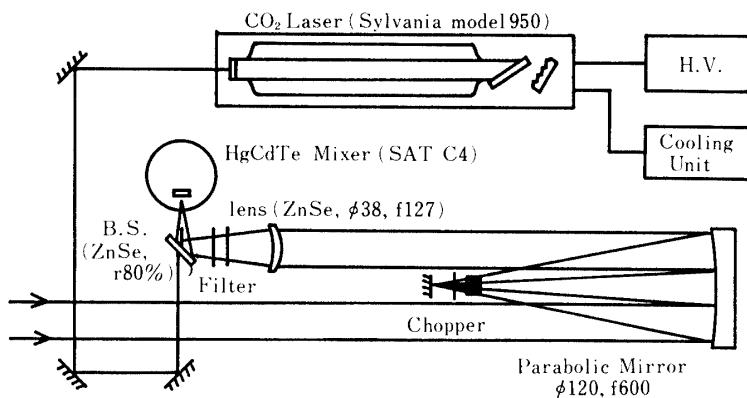


第7図 リムスキャンによる大気分光観測

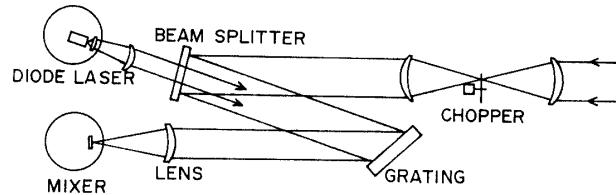
分光計の性能は前述の通りを仮定し、測定パラメータを $B=10\text{ MHz}$, $\tau=100\text{ sec}$, $L=100\text{ km}$ とすれば、(18)式より $S/N>1$ になる検出限界は、 $P/P_A>2.2\text{ ppt}$ になる。また、200 ppt の存在量では、 $S/N\sim 200$ で測定できることが予想される。これから、分光計はミキサが量子限界に近い感度で動作し、光路長 100 Km のリムスキャンが出来れば、OCS を検出できると考えられる。

3. レーザヘテロダイン分光計の試作

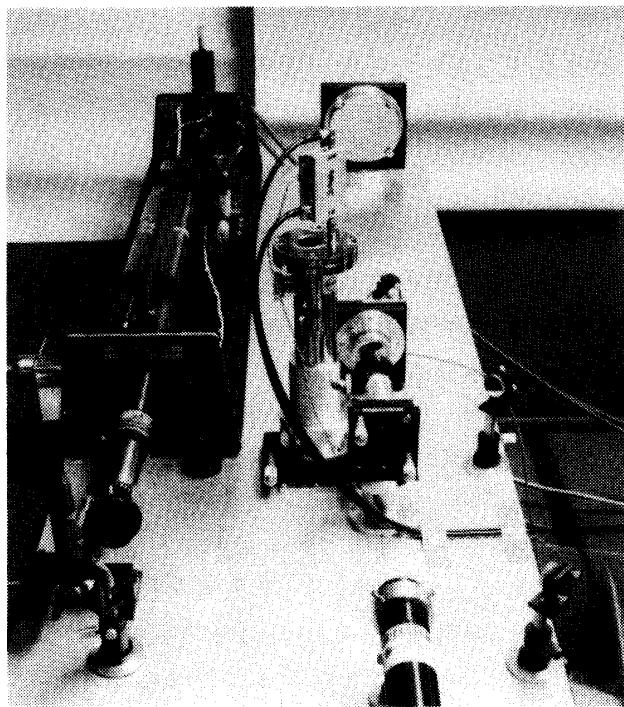
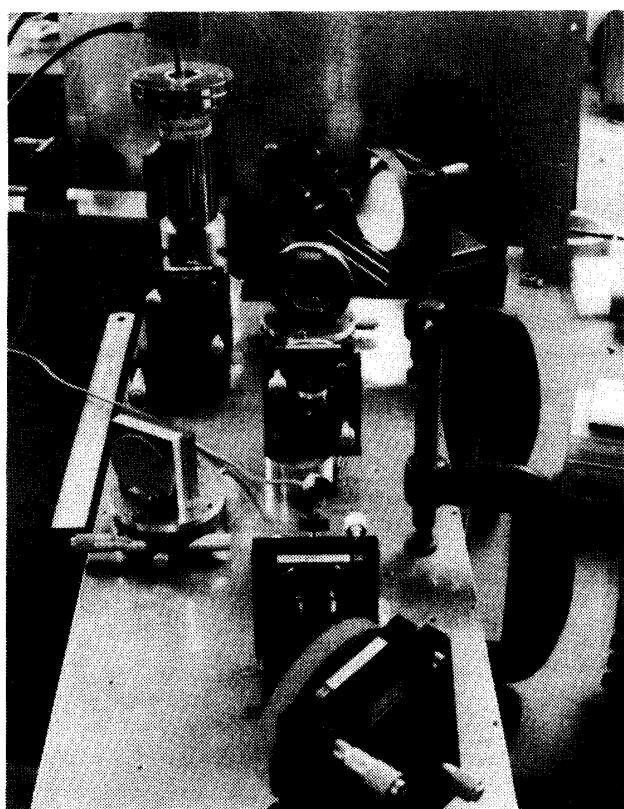
大気微量成分の観測を目的に分光計の開発に着手した時点で、ヘテロダイン検波の局発光源に使用でき、入手可能な赤外レーザは CO_2 レーザだけであった[20]。また、国内企業が開発に成功した、波長 $10\text{ }\mu\text{m}$ 帯で発振する PbSnTe 半導体レーザは、モード出力が小さく、局発レーザになるかどうかかも不明であった。しかし、これが利用できれば、発振波長の連続同調特性から $3\sim 30\text{ }\mu\text{m}$ の赤外域を、すべて分光できるヘテロダイン分光計が実現する。これは、 CO_2 レーザの場合、同位体ガスを用いても 200 本程度の発振線の近傍の、数 100 MHz しか分光できないことに比較すると、大きな利点である。このため、 CO_2 レーザを局発光源に用いる方式と、半導体レーザを用いる方式を平行して開発して来た[21]。現在、両システムとも実験室で太陽光を、分解能 15 MHz ($\nu/\Delta\nu \sim 2\times 10^6$) で安定にヘテロダイン分光できる性能を得て、対流圏と成層圏の多数の吸収線を検出している。分光計の



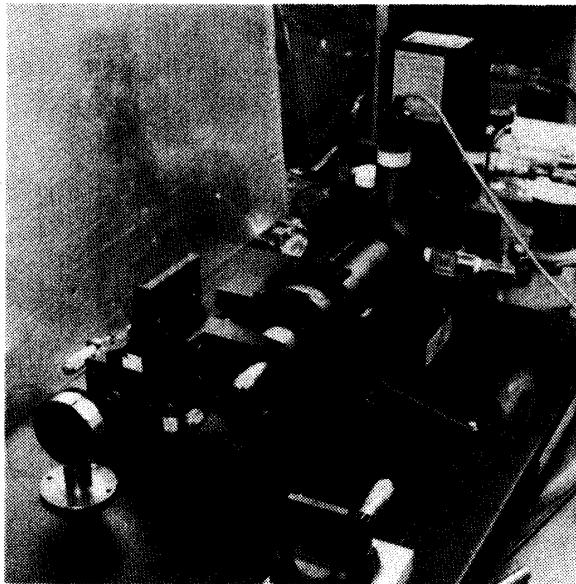
第8図 CO_2 レーザヘテロダイン分光計光学部



第9図 半導体レーザヘテロダイン分光計光学部

第10図 CO_2 レーザヘテロダイン分光計光学部

第11図 半導体レーザヘテロダイン分光計光学部



第12図 半導体レーザ冷凍器

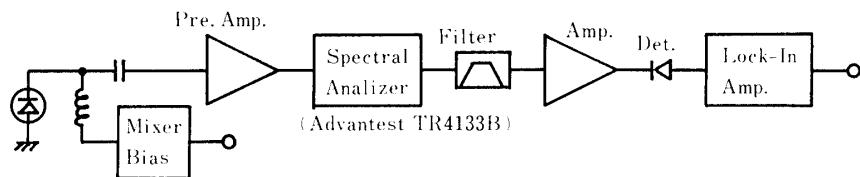
感度もほぼ量子限界の値が得られている。本節では、これらの分光計の光学系と、共通して使用しているIF分光計、および動作特性を述べる。

第8、9図にそれぞれの光学系のブロックダイヤグラムを、第10、11、12図にその写真を示す。基本的には、太陽追尾装置から入射する信号光を結像させ、光学チョッパにかけて再び平行光に戻し、局発光と波面合成してミキサに集光している。チョッパ光学系はブレードの端による回折で、光の波面が乱れるのを防止するためにある。ここで、CO₂レーザ方式に用いた反射光学系は、焦点距離の波長特性がない、可視光で光学位置調整が出来る等の利点がある。しかし、高精度の軸はずし放物面鏡が必要で、現在の非球面製造技術では球面レンズ系の特性より劣るので、全面採用は出来なかった。信号光と局発光の波面合成は、CO₂レーザ方式では3Wの十分なレーザ出力があるので、エアリー波/平面波方式とし、半導体レーザ方式では、100μWしかない出力を有効に利用できるエアリー波/エアリー波方式とした。これらの光学系に使用したレーザ、ミキサ、光学素子等は、第1表に規格をまとめておく。

太陽光をヘテロダイイン分光する際に問題となるのは、IF帯域外の無効信号光によるミキサの飽和と感度低下である。これは過大な信号電流と信号光ショット雑音のためであり、測定スペクトルを変形させたり、測定を不可能にする。回路的処理での解決は、ミキサの非線形応答も原因なので困難であり、光学フィルタを用いて入射光の波長選択をした。CO₂レーザ方式では二枚のローパスフィルタを用い、半導体レーザ方式では回折格子を用いた。回折格子は同時に半導体レーザの発振モードも選択していて、このレーザでヘテロダイイン分光できたのは、無吸差光学素子と回折格子の利用にあると言って良い。

IF分光系は、ミキサに生じたヘテロダイイン電流のパワースペクトルを得るもので、プリアンプを除いて共通使用している。そのブロックダイヤグラムを第13図に示す。プリアン

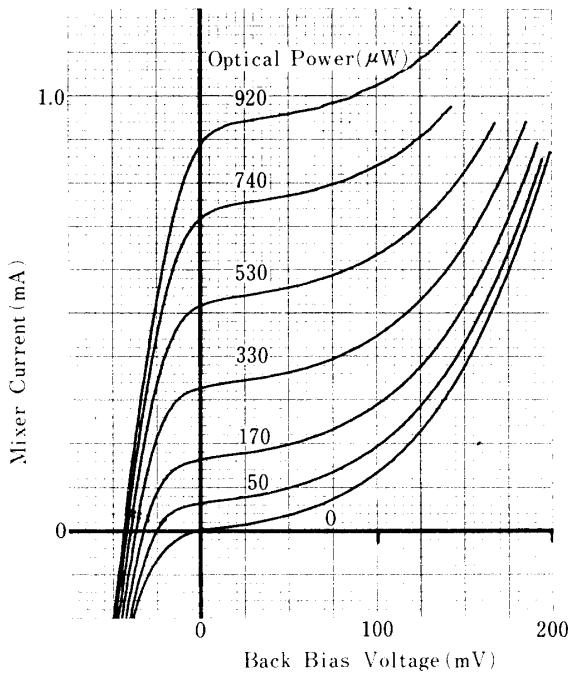
の雑音は、量子限界感度を得るのに必要な局発電力を増大させるので、低雑音である必要がある。CO₂レーザ方式では、帯域幅5~1800MHz, NE=5dB, A=49dBの特性のものを、半導体レーザ方式では、帯域幅5~80MHz, NF=0.55dB, A=53dBの特性のものを自作して使用した。なお、ミキサに直流逆バイアスをかけるには、OPアンプによるカレントミラー回路から、定電圧をチョークコイルを通して印加し、同時に光电流値をモ



第13図 IF 分光系

表1 レーザヘテロダイン分光計の素子規格表

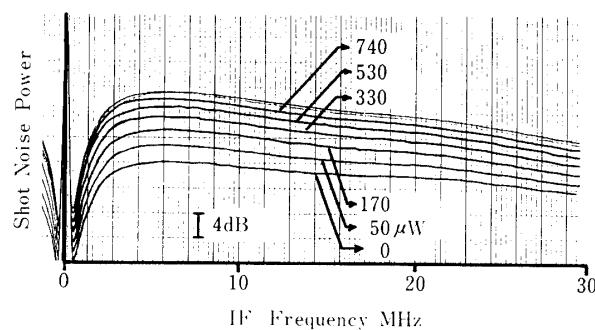
	CO ₂ レーザヘテロダイン分光計	半導体レーザヘテロダイン分光計
局発レーザ	シリバニア社 model 950 (出力3W, 発振線9P(6)~9P(36))	富士通社 PbSnTe 半導体レーザ (出力200μW, 波長9.6μm)
赤外ミキサ (HgCdTe赤外 検出器)	SAT社 CLASS C4 (120×120μm, η=51%, B=1200GHz) NERC社 MPV11-.2-B70 (200×200μm, η=70%, B=100MHz)	SAT社 CLASS C4 (120×120μm, η=51%, B=1200GHz) NERC社 MPV11-.2-B70 (200×200μm, η=70%, B=100MHz)
信号光集光素子	II-VI社 ZnSe メニスカスレンズ (1.5φ, f=5", AR10.6μm)	昭和光機社 Ge二枚組レンズ (40mmφ, f=50mm, AR10.6μm)
ビームスプリッタ	II-VI社 ZnSe (1.0'φ, R70%)	II-VI社 ZnSe II (2'φ, R49%)
局発光集光素子		II-VI社 Ge平凸 + GANOS社 Geメニスカスレンズ (1'φ, f=2') (1.1φ, f=2.5")
チョッパ光学系	放物面鏡 (120mmφ, f=600mm)	II-VI社 ZnSe メニスカスレンズ 2枚 (1.5'φ, f=5')
フィルタ	AGA社 赤外ローパスフィルタ (Ge 1'φ, λ _c =6.5μm, T=82%) (Ge 1'φ, λ _c =7.7μm, T=80%)	回折格子 (Aℓコートレブリカ, 58×58mm, 66本/mm)
レーザ冷凍器		LASER ANALYTIC社 SP-5730(二軸支持マウント)
温度制御器		LASER ANALYTIC社 SP-5720
レーザ電源		LASER ANALYTIC社 SP-5820



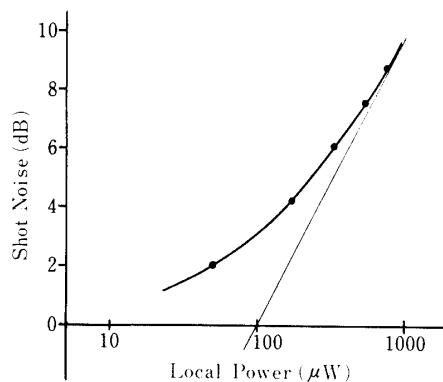
第14図 ミキサの直流電圧電流特性

ニタできるようにした。プリアンプで増幅された信号は、スペクトルアナライザ(アドバンテスト社, TR 4133 B)を掃引フィルタとして利用して、解析する IF 帯域を抽出する。この信号は分解能決定用固定フィルタを通して二乗検波され、IF 信号電力を得る。これはヘテロダイイン信号以外に、(8)式のすべての離音を含んでいるので、チョッパに同期したロックインアンプを通して、ヘテロダイイン信号だけを得ている。

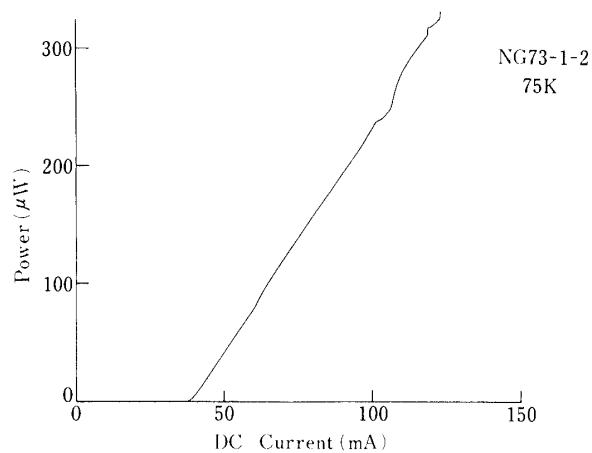
次に、ミキサと局発半導体レーザの特性を示しておく。有効面 $200 \mu\text{m}$ 角の PV 型 HgCdTe 赤外検出器に、 CO_2 レーザ光を照射した場合の直流電圧流特性を、第14図に示す。光強度は偏光器の回転角で 7 段階に変化させた。光を遮断した時のミキサの飽和暗電流は、200 mV 以上の逆バイアス電圧でブレークダウンを起こして、急激に増加する。ミキサとして有効に動作するダイナミックレンジ、 G_D^{-1} 、が最大のところは、バイアス電圧 50 mV であることがわかる。このときミキサ/プリアンプから発生する雑音は、熱雑音と回路雑音、局発ショット雑音である。第15図にミキサ雑音の 30 MHz までのスペクトル例を示す。レーザ強度の増加に従い、ショット雑音が IF 周波数に対して一様に発生している。これからショット雑音と局発光強度の関係をプロットすると、第16図が得られる。このミキサでは 300 μW の局発電力で、局発ショット雑音が他の雑音より 6 dB(4倍)卓越して、ほぼ量子限界の感度に到達すると予想できる。 CO_2 レーザの出力 3 W は、これに比較して 10^4 倍の余裕があり、通常は局発光電流 $i_L = 1 \text{ mA}$ で、動作させている。しかし、半導体レーザでは出力が 100 μW であり、光学系の最適化によっても、多少の感度低下はまぬがれない。なお、分光実験では、IF 帯域幅を広くとれる高速の $120 \mu\text{m}$ 角の有効面のミキサ



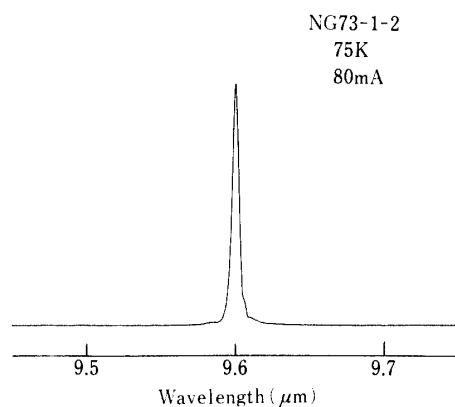
第15図 ミキサのショット雑音スペクトル



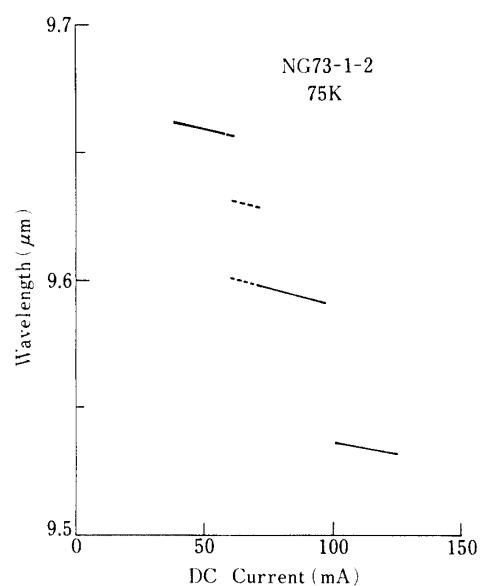
第16図 ミキサのショット雑音の局発光電力特性



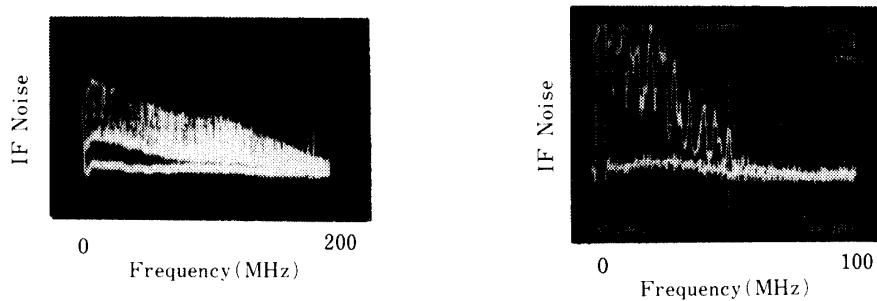
第17図 半導体レーザの出力電力特性



第18図 半導体レーザの発振スペクトル



第19図 半導体レーザの波長同調特性



第20図 半導体レーザの局発雑音

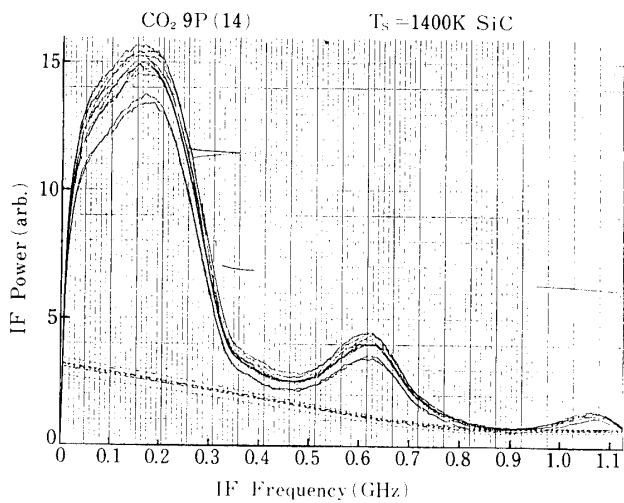
を用いた。これは逆バイアス電圧を0.9Vに設定して、量子効率はほぼ同じ値であった。

半導体レーザは液体窒素温度程度で動作し、メーカーの測定による出力電力特性、発振スペクトル、発振波長の同調特性を、第17~19図に示す。このレーザは発振しきい値電流が35mAで、この2.6倍の電流値まで単一縦モード発振し、 0.8 cm^{-1} の範囲でモードホップを起こさず連続同調できることが特徴である。一般に、半導体レーザはわずかなもどり光がフィードバックしても、発振が不安定になり雑音が増大する。これはレーザの動作点やレーザを冷却している冷凍器の振動などにも影響される。さらに、レーザ自身で発生する過剰雑音もあり、これらを完全に除かなければ、局発レーザには使用できない。他のレーザ素子ではあるが、IFスペクトルに出現した局発雑音を第20図に示す。図中の(a)は、スペクトル構造はないが、冷凍器の振動に同期して発生する過剰雑音的な場合、(b)は周期的スペクトル構造の典型的なもどり光雑音である。後者は光路中にアイソレータを挿中すれば、原理的には解決するはずであるが、十分な性能のアイソレータは得られていない。しかし、分光計の試作段階で集光光学系の収差を小さくすれば、もどり光雑音も小さくなることを見出し、このシステムではほぼ満足できるレベルになっている。

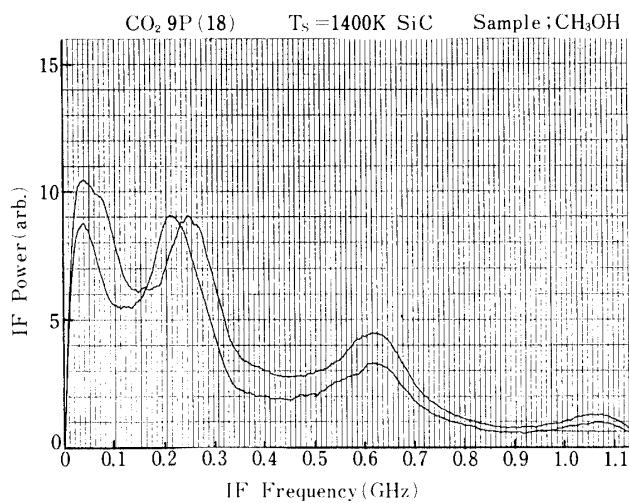
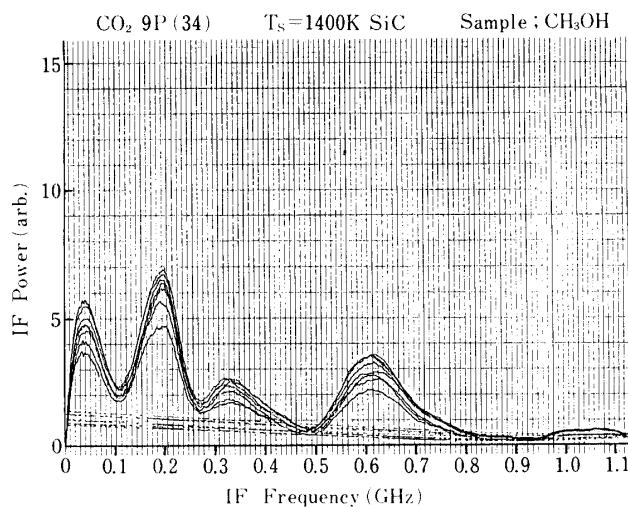
4. ヘテロダイン分光実験

はじめにCO₂レーザ方式分光計の結果を述べる。室内分光実験では、信号源に1400Kのグローバ光源(発熱部直径2.7mm、長さ17mm)を使い、吸収気体を入れるガスセル(ステンレス製、窓材ZnSe)は、有効径36mm、長さ1.5mである。分光計と光源の距離は5mとし、その間にガスセルを置いた。

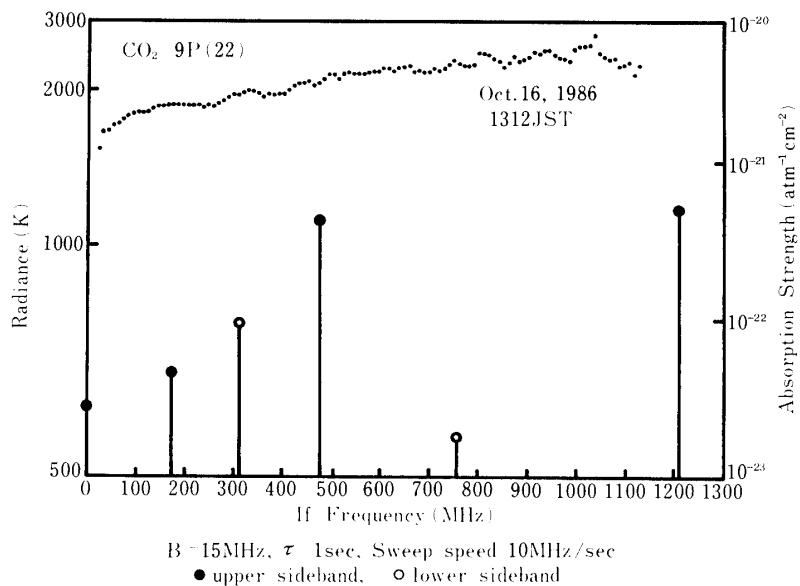
まず、吸収セルを真空にして、光源の光を分光し、システム特性を測定した。局発CO₂レーザの発振線は9P(14)($\lambda=9.505\text{ }\mu\text{m}$)で、分光パラメータは、分解能15MHz、時定数1sec、掃引範囲5~1100GHz、掃引速度10MHz/secである。得られた分光スペクトルを



第21図 黒体輻射光の分光(CO₂ レーザ 9P(14))

第22図 CH₃OH の分光(CO₂ レーザ 9P(18))第23図 CH₃OH の分光(CO₂ レーザ 9P(34))

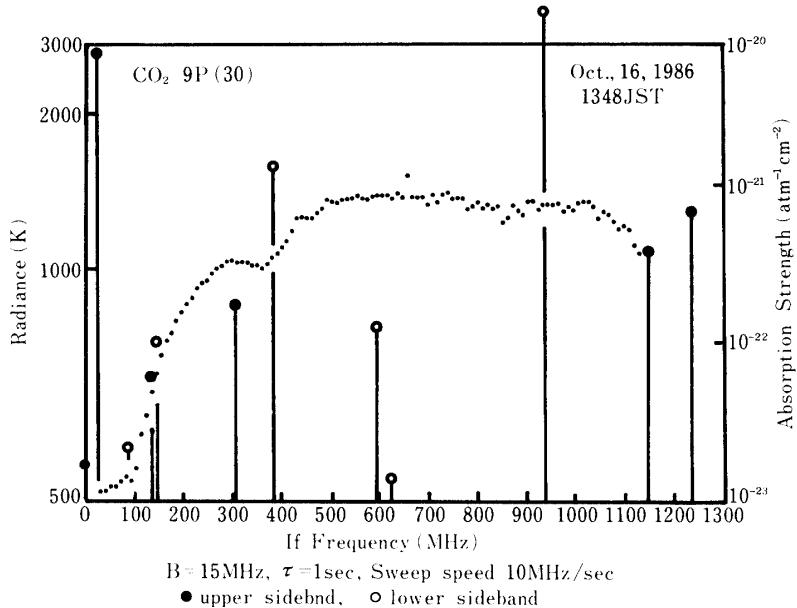
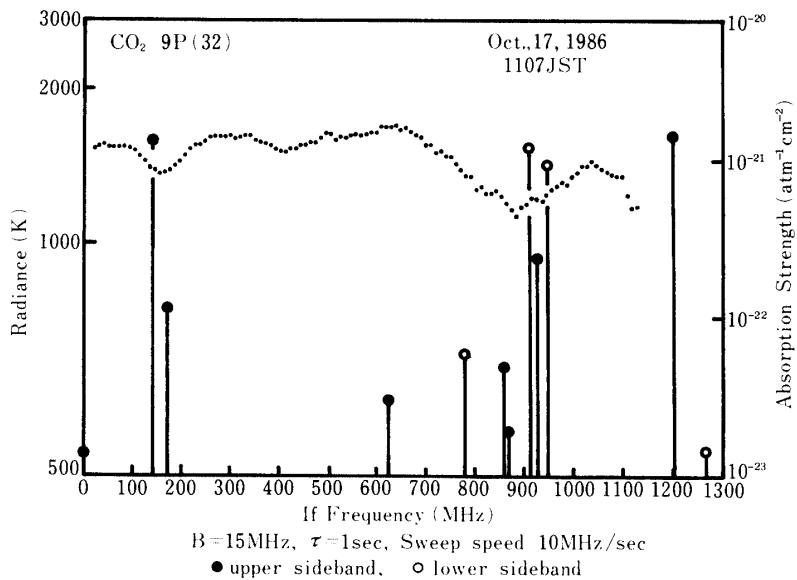
第21図に示す。これは11回の掃引を繰返して記録した。1回の掃引に2分かかり、掃引ごとに、実験室の空調器による温度の変動が原因と思われるレベル変動を生じた。スペクトルの460 MHz周期のうねりは、ミキサとプリタンプ間のインピーダンス不整合で生じている。高周波で信号レベルが下っているのは、ミキサの特性によるものである。しかし、局発ショット雑音はほぼ一様なレベルで発生しているので、ヘテロダイイン信号だけが高周波で下がる原因是不明である。システムの感度は(18)式を用いて、この記録のS/N比から、 $1.7 \times 10^{-19} \text{ W/Hz} = 8.1 h\nu$ となる。理論限界は偏波、チョッパ損失、量子効率 $\eta = 0.51$ 、光学系透過率 $\eta_0 = 0.8$ から、 $9.8 h\nu$ が最小値である。システムの値がこれより良いのは、波

第24図 太陽光の分光(CO₂ レーザ 9P(22))

面合成法による利得分である。

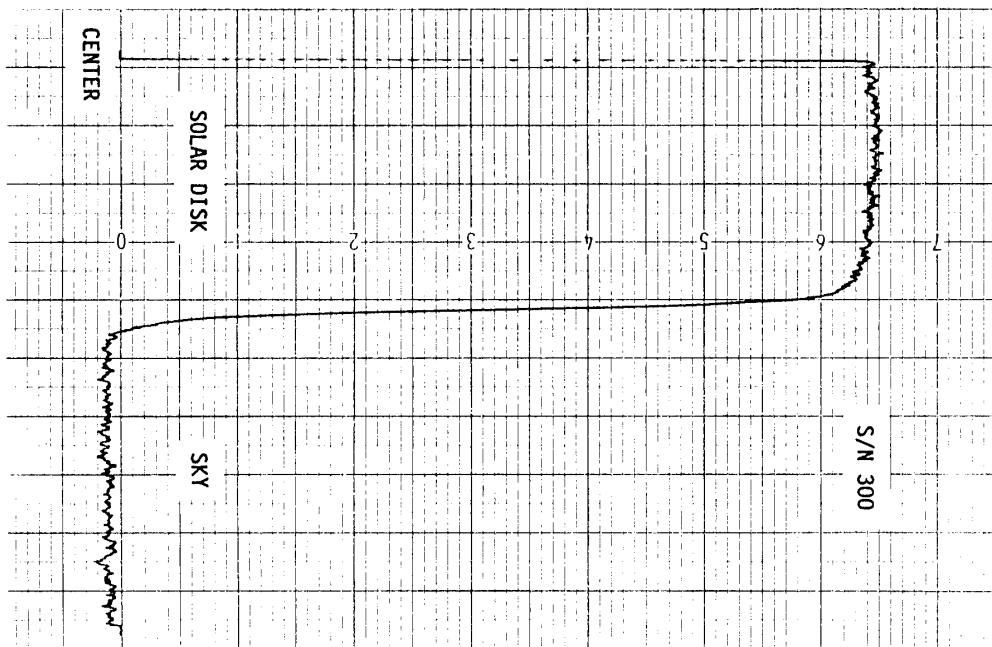
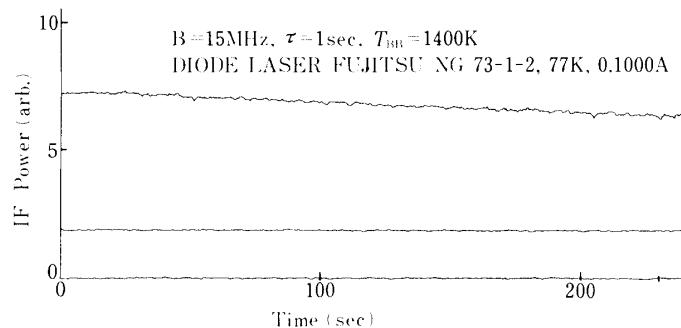
吸収スペクトルは、約 1 Torr の CH₃OH をガスセルに封入して測定した。レーザの発振線を 9 P(14)～9 P(36)まで順次選択して測定すると、それぞれ異なった吸収スペクトルが得られた。そのうち、9 P(18)と 9 P(34)の場合を第 22, 23 図に示す。これらを第 21 図と比較すると吸収線の存在がよくわかる。第 22 図はレーザの発振周波数をゲインカーブ中央に合わせたのと、共振器長を変えて少しずらせた場合を記録した。周波数をずらせたためにレーザ出力が低下して、ヘテロダイン信号レベルも下がっているが、150 MHz に現われた吸収線は、120 MHz に移動している。このことから、CO₂ レーザ方式の分光計でヘテロダイン分光できていることが確認された。

このシステムでの太陽光の分光実験は、口径 40 mm の太陽追尾装置を使い、実験室の窓から光を導入して行った。測定は快晴の天候を選び、レーザを 9 P(14)～9 P(36)に順次選択した。そのうち、9 P(22), 9 P(30), 9 P(32)の例を第 24～26 図に示す。これらの分光結果はデータを、第 21 図の室内光源で測定したシステム特性で規格化し、等価信号源温度でプロットした。また、図中のバーグラフは、AFGL 大気吸収線表から調べた O₃ 吸収線の観測される周波数と吸収線強度である。先端の黒(白)丸は局発周波数より低(高)周波側の吸収線であることを示す。レーザが 9P(22) の測定波長域(第 24 図)では、O₃ の強い吸収線が存在せず、対流圏の H₂O, CO₂ によるブロードな吸収も弱いので、測定された太陽等価温度が高く、成層圏 O₃ の吸収線も見られない。しかし、レーザを 9P(30), 又は, 9P(32) に選択すると、吸収線表で調べた位置に明瞭な吸収が観測された。ただし、測定のうち唯一の例外は、9P(30) での 940 MHz の吸収線である。これは日時をかえて測定しても観測されていない。

第25図 太陽光の分光(CO₂ レーザ 9P(30))第26図 太陽光の分光(CO₂ レーザ 9P(32))

観測された吸収線の中では、第26図の141 MHzの吸収線が、実際の応用である成層圏O₃層の観測に重要である。これは他の強い吸収線から周波数が十分離れており、正確な吸収線形状を測定できるので、O₃の成層圏高度分布を求めることが出来る。ちなみに吸収線の半値幅70 MHzから、0.014気圧の大気高度付近のO₃層の吸収と推定され、地上高度に換算すると29 Kmとなる。これは従来測定された中緯度での極大高度20~25 Kmに近い。

HETERODYNED SOLAR RADIATION June 1, 1984

第27図 太陽一次元像のヘテロダイン検出(CO_2 レーザ)第28図 黒体輻射光のヘテロダイン検出(N_2 冷却半導体レーザ)

従って吸収線形状を高度分布に変換するプログラムを用意すれば、オゾン層の破壊の有効的な手段となる。

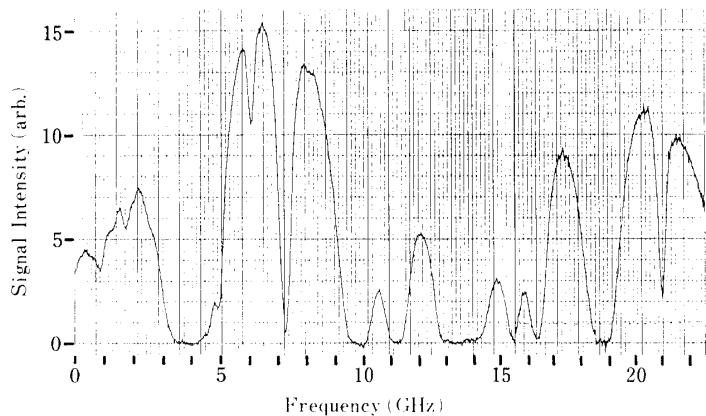
分光実験ではないが、分解能 100 MHz、空間分解能 0.7 mrad で太陽の中心から半径方向に一次画像をヘテロダイン検出した結果も第27図に示しておく。

半導体レーザ方式の分光実験では、IF 分光系で処理を行わずに、局発レーザ自身を電流掃引して分光スペクトルを得た。IF 周波数は 60 MHz にスペクトルアナライザの掃引を止めて固定し、レーザの電流を 50 $\mu\text{A}/\text{sec}$ の速度で 80~104 mA の範囲を掃引した。ファブリペロー共振器のモニタにより、 0.58 cm^{-1} の範囲で連続的に波長を変化することが出

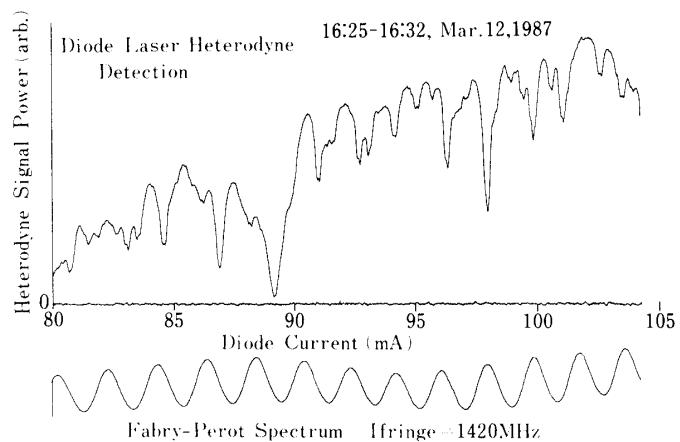
来ている。しかし、絶対波長を測定する波長較正部分が不完全なので、測定される吸収線の同定は現在は不可能である。

ヘテロダイン検波感度を測定するため、試作前の基礎実験で測定したグローバ光源の検波結果を第28図に示す。レーザの波長は一定で、信号の時間変化だけを記録した。3本のデータは、上段はヘテロダイン動作時、中段は信号光だけミキサに入射した時、下段はミキサを覆った時のものである。ここでは回折格子を使用していないので、中段の信号光ショット雑音が大きく発生し、ミキサの非線形性が起きていなければ、上段との差がヘテロダイン信号成分である。仮にこれが正しいとすれば、この信号のS/N比220から、感度は $NEP/B = 5.9 \times 10^{-19} W/Hz = 29 h\nu$ の値が得られる。これはCO₂レーザ方式により3.6倍劣化しただけで、半導体レーザによる感度ではこれまで報告されている中で最高である。

試作分光計による太陽光分光例を第29、30図に示す。測定の回路的分解能は15MHzで



第29図 太陽光の分光(N₂冷却半導体レーザ)



第30図 太陽光の分光(冷凍器冷却半導体レーザ)

あるが、第29図の場合はレーザ電源がライン雑音を発生したため、レーザの周波数が変調を受けて実際の分解能は180 MHzに劣化している。第30図の場合には電源は修理済である。また、レーザを前者では液体窒素デュクターで冷却しているが、後者では閉回路ヘリウム冷凍器で冷却し、両者でのクレーザ動作温度はわずかに異っている。そのため測定スペクトル域は異っている。これらの分光スペクトルから第1に言えることは、出力100 μW 程度の半導体レーザでも CO₂ レーザ方式分光計に匹敵する高いS/N比で分光できることである。分解能も第30図の成層圏O₃の吸収と思われる鋭い吸収線が、120 MHz間隔の二重ピークになっていることから、15 MHzに近い値が得られていると思われる。第2に、CO₂ レーザ方式ではレーザ発振線から1 GHzの範囲しか分光できないのに対して、半導体レーザ方式では、電流同調だけでも17 GHz以上の広いスペクトル範囲を完全に分光でき、成層圏物質の吸収だけでなく対流圏の3 GHz程度の幅の吸収線までも、多数分光できている。レーザの動作温度を変えれば、さらに大幅に分光波長範囲を変えられることも示された。

5. まとめ

試作したレーザヘテロダイン分光計は、CO₂ レーザ局発方式と半導体レーザ局発方式で理論限界、およびそれに近い超高感度が得られた。従って現在以上の光学系の最適化によっても、大幅な感度上昇は見込めず、今後の研究は実際に大気微量成分を観測するためのシステム化に移っている。特に半導体レーザ方式では、任意の波長に同調できることから、波長較正系でこれを制御しないと吸収線の同定が不可能になる。また、現在は吸収スペクトルを得るために周波数掃引式の処理をしているが、マルチチャンネル型にすれば10倍以上のS/N比の向上になる。これらの点については、開発例が豊富で、市販品もあるので早急に整備したいと考えている。

試作分光計で成層圏と対流圏の多数の吸収線を検出できたことは、レーザヘテロダイン分光が大気環境計測の強力な手段になりうることを示したものである。今後、成層圏硫黄化合物の検出に向けて大気球搭載システムの開発を進めて行きたい。また、この分光法が惑星大気分光観測や天文赤外分光にも応用されることを願っている。

謝 辞

本研究の実施にあたり、御指導を戴いた本研究所の五十嵐隆部長に感謝致します。また、半導体レーザを御提供して戴いた富士通研究所の篠原宏爾氏に感謝致します。

本研究の一部は科学技術庁の昭和55~59年度の科学技術振興調整費による「高性能レーザーセンシングシステムに関する研究」の一環として行われた。また一部は環境庁の国立機関公害防止等試験研究費で行われた。

参考文献

- [1] Oehlert, G. W., J. Geophys. Res., **91**, 2675-2679, 1986.
- [2] Callis, L. B., M. Natarajan, J. Geophys. Res., **91**, 10,771-10,796, 1986.
- [3] Inn, E. C. Y., J. F. Veddev, D. ÓHara, Geophys. Res. Lett., **8**, 5-8, 1981.
- [4] Heterodyne Systems and Technology, NASA, CP 2138, 1980.
- [5] Menzies, R. T., C. W. Rutledge, R. A. Zanteson, D. L. Spears, Appl. Opt., **20**, 536-544, 1981.
- [6] Frerking, M. A., D. J. Muehlner, Appl. Opt., **16**, 526, 1977.
- [7] Hoell, J. M., C. N. Harward, B. S. Williams, Geophys. Res. Lett., **7**, 313-316, 1980.
- [8] Hoell, J. M., C. N. Harward, W. Lo, Opt. Engineering, **21**, 320-326, 1982.
- [9] Abbas, M. M., T. Kostiuk, M. J. Mumma, D. Buhl, V. G. Kunee, L. W. Brown, Geophys. Res. Lett., **5**, 317-320, 1978.
- [10] Glenar, D., T. Kostiuk, D. E. Jennings, D. Buhl, M. J. Mumma, Appl. Opt., **21**, 253-259, 1982.
- [11] Kostiuk, T., M. J. Mumma, Appl. Opt., **22**, 2644-2654, 1983.
- [12] Glenar, D. A., D. Deming, D. E. Jennings, T. Kostiuk, M. J. Mumma, Astrophys. Jaurn., **269**, 309-318, 1983.
- [13] Asai, K., T. Itabe, T. Igarashi, Optical and Laser Remote Sensing, Ed. D. K. Killinger and A. Mooradian, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 1983.
- [14] Itabe, T., K. Asai, M. Ishizu, T. Aruga, T. Igarashi, J. Opt. Soc. Amer. A, Ser.2, **2**, no. 13, p 104, 1985.
- [15] 篠原宏爾, 昭和55~59年度科学技術振興調整費高性能レーザセンシングシステムに関する研究報告書, 70-73, 科学技術庁研究調整局, 昭和60年12月.
- [16] Menzies, R. T., Laser Monitoring of the Atmosphere, 297-353, Ed. E. D. Hinkley, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 1976.
- [17] Fink, D., Appl. Opt., **14**, 689-690, 1975.
- [18] Cohen, S. C., Appl. Opt., **14**, 1953-1959, 1975.
- [19] Salzman, J., A. Katzin, Appl. Opt., **23**, 1066-1074, 1984.
- [20] 山下純一郎, 藤井陽一, 斎藤成文, 信学会論文誌, J 61-C, 659-665, 1978.
- [21] 石津美津雄, 板部敏和, 五十嵐隆, 林理三雄, 有賀規, 昭和55-59年度科学技術振興調整費高性能レーザセンシングシステムに関する研究報告書, 55-62, 科学技術庁研究調整局, 昭和60年12月.