

1.3 μm 帯通信用半導体レーザーを用いたレーザー吸収分光分析システム

香川 直己* 橋爪 泰史**†

Laser Absorption Spectrometry System with a 1.3 μm Diode Laser

Naoki KAGAWA Yasushi HASHIZUME

ABSTRACT

We describe a laser absorption spectrometry system for sensitive trace gas detection in the atmosphere. A communication laser diode that radiates 1.3 μm band wavelength is used as a light source. The laser was tuned continuously by a modulated current in two bands. One of them covered an absorption line of water completely. Following the characteristics of the light source, we constructed a prototype system for monitoring absorption spectrum of water and carried out experiments. As a result of the experiments, we obtained an absorption spectrum which agreed with a theoretical spectrum calculated from the absorption lines database.

キーワード：吸収分光，半導体レーザー，通信用レーザー，近赤外，大気

Keywords: absorption spectrometry, diode laser, communication laser, near infrared, atmosphere

1. まえがき

レーザー光の共鳴吸収現象を利用した大気含有ガスの測定装置は原理的に、感度、応答速度とも優れているので、国内外で様々なものが試みられている。特に、半導体レーザーは線幅の狭いスペクトルを持ち、強度が強く安定した出力が得られるため能動分光装置の光源として有効である⁽¹⁻⁴⁾。しかしながら、いまだに精度、応答速度、安定性、に加えて、取り扱いの容易さを兼ね備えているものは、実用化されていない。これは、光源として、発振波長の制御が行いやすい可同調半導体レーザーを用いていることに一因がある。可同調半導体レーザーの代表的な素子として、鉛塩化合物があるが、安定発振のために深冷却が必要であり、冷却装置のためにシステムが大きくなる⁽⁵⁾。

そこで、比較的廉価で、室温発振可能な 1.3 μm

帯通信用半導体レーザーを光源として使用することを試みた。大気中に存在するガスの中で、1.3 μm 帯のレーザー光を吸収するガスは、 H_2O 、 CO_2 、 CH_4 があり⁽⁶⁾、このレーザーを光源とすれば軽便な温室効果ガスのモニターとなることが期待できる。

通信用半導体レーザーを光源に用いた吸収分光分析装置の報告もされているが⁽⁷⁾、この装置は、被測定ガスを多重反射セルにサンプリングし、濃度測定をするものである。我々の提案する装置の特徴は、ガスのサンプリングを行わず、開放大気中のガスの吸収線を、レーザーの発振波長を連続的に変化させて、掃引し、吸収スペクトルを得ることにある。この手法は、多数のデータ点から情報が得られるので測定値の信頼性を高めることができるという利点がある。

しかし、通信用半導体レーザーは本来、発振波長を固定して使用するものであるため、少なくとも一本

*電子・電気工学科

**工学研究科電子・電気工学専攻

†現在 中西電機工業(株)

の吸収線を完全に掃引できる程度に連続的に波長を変化させることができるかが問題となる。

そこで本論文では、先ず、通信用半導体レーザの諸特性を調べ、吸収分光装置の光源としての使用が可能であるかの検討について述べ、次に吸収スペクトル測定のための試作装置を用いて行った、H₂Oによる光吸収量の測定実験の結果について述べる。

2. レーザ吸収分光の原理

大気中にレーザ光を透過させると、レーザ光は特定の波数でガスの共鳴吸収を受ける。このときレーザの出射光パワ $P_o(\nu)$ と透過光パワ $P_t(\nu)$ は

$$P_t(\nu) = P_o(\nu) \exp[-\chi(\nu)] \quad \dots \dots \dots (1)$$

で表されるランベルト・ベールの法則に従う。(1) 式中の $\chi(\nu)$ は絶対吸収量と呼ばれる量で、光路長 L 、ガスの濃度 C 、ガス固有の吸収量 $\alpha(\nu)$ の積

$$\chi(\nu) = \alpha \cdot C \cdot L \quad \dots \dots \dots (2)$$

で表される。ここで、吸収係数 α は波数 ν の関数となる。濃度既知のガスにレーザ光を透過させたときの絶対吸収量の値を $\chi_R(\nu)$ 、被測定ガス中を透過させたときの絶対吸収量を $\chi_X(\nu)$ はそれぞれ、

$$\chi_R(\nu) = \alpha(\nu) \cdot C_R \cdot L_R \quad \dots \dots \dots (3)$$

$$\chi_X(\nu) = \alpha(\nu) \cdot C_X \cdot L_X \quad \dots \dots \dots (4)$$

と表されるが、参照ガスの濃度距離積 $C_R \cdot L_R$ 、および測定光路長 L_X は正確に測定できるので、被測定ガスの濃度 C_X は

$$C_X = \frac{|\chi_X(\nu)|}{|\chi_R(\nu)|} \cdot \frac{L_R}{L_X} \cdot C_R \quad \dots \dots \dots (5)$$

となり、参照ガスと被測定ガスの規格化透過量を測定すれば被測定ガスの濃度を求めることができる。

3. 半導体レーザ NDL5717P の諸特性

本装置の光源として、1.3 μ m 帯通信用半導体レーザ NDL5717P(NEC)を使用した。このレーザは、21 \times 12.5mm のケース内に、温度検出用サーミスタ、冷却用ペルチェ素子と共に納められ、モジュールを形成している。レーザ光線は、シングルモード光フ

ァイバケーブルを介して、モジュール外へ取り出される。

このレーザの発振スペクトルを、光スペクトラムアナライザ MS9030A, MS9701C (アンリツ) を用いて測定した。その結果を図1に示す。図よりモード間隔が約 0.84nm のマルチモードレーザであることが確認できる。詳細は後述するが、マルチモード発振することにより、正確な吸収スペクトルが得られなくなるため、吸収分光装置の光源として用いるためには、サブモードを抑圧する必要がある。

図2は、レーザモジュール(ケース)温度とスレッショルド電流の関係を示したものである。レーザモジュール温度が高くなると、スレッショルド電流 I_{th} が上昇し、レーザの掃引電流幅が狭くなると共に、レーザパワが減少する。一本の吸収線を掃引するために、レーザの掃引電流幅を、少なくとも 10mA 確保する必要があるため、本測定装置を稼働させるためのレーザモジュール温度の上限は 60 $^{\circ}$ C となる。

次に、モジュール温度を変化させた場合に、どれくらい発振波長が変化するかを調べるため、発振波長対温度特性を測定した。その結果を図3に示す。この結果より温度が高くなるにつれて、発振波長が長波長側へ移動している。ここで、温度変化に対する波長の変化の関係を、二次関数で線形フィッティ

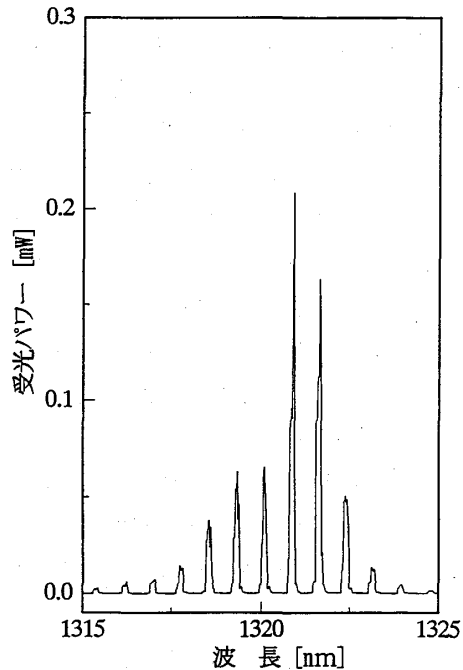


図1 NDL5717P の発振スペクトル
Fig.1 Fluorescence spectrum of NDL5717P.

ングした結果、レーザ発振波長 λ [nm]と、レーザモジュール温度 T [°C]の間には、

$$\lambda = -7.1 \times 10^{-5} T^2 + 0.084487T - 1.661340 + \lambda_{20} \quad (6)$$

の関係が成り立つことが判った。ただし、式中の λ_{20} はレーザモジュール温度 20°Cにおける発振波長 [nm]である。また、レーザモジュール温度変化による各モードの発振波長の変化量は 4[nm]であった。この結果に基づき、吸収線の半値幅が 0.05cm^{-1} 、レーザモジュール温度 20.0°C、レーザ発振波長の変動量を吸収線半値幅の 10%と仮定した場合にレーザモジュールの温度コントロールに必要とされる温度精度を求めると 18[mK]となった。

図4は発振波長対駆動電流特性である。この結果より、レーザモジュール温度 24°C度の場合、発振モードのヒステリシス現象⁽⁶⁾により多少前後するが、駆動電流 31.6[mA]、22.1[mA]付近でモードジャンプが確認できた。また、電流の変化に対し発振波長がほぼ直線的に変化している。一次関数による線形フィッティングで求めたそれぞれのモードの同調率は $0.011[\text{nm}/\text{mA}]$ と $0.017[\text{nm}/\text{mA}]$ で若干の相違があることが判る。モードジャンプの波長差は約 $0.84[\text{nm}]$ の正数倍である。この値はレーザ発振における縦モードの発振間隔を示している。この測定結果より、駆動電流を変えることにより、連続的に変化する主モードの波長変化量は $0.1\sim 0.3[\text{nm}]$ であることが判った。

以上の諸特性に基づき、半導体レーザ NDL5717Pの波長掃引特性と吸収線半値幅の関係を求めた。その結果を図5に示す。図より温度を変化させることで得られる掃引幅は吸収線半値幅より非常に広いことが判る。それに比べ電流を変化させることで得られる掃引幅は一本の吸収線を包含する程度である。レーザの波長掃引特性の観点から見た場合、このレーザは吸収線の測定用光源としての使用が可能である。両特性を利用して、まず、温度調節により吸収線の有る波長域にレーザの発振波長を設定し、次に電流を高速に変化させ、レーザの波長を掃引することで高速な吸収分光が可能となる。

しかし、図1に示したように、NDL5717Pはマルチモード発振をする。主モード以外の複数のサブモードが吸収線測定時にどのような影響を及ぼすかについてシミュレーションを行った結果を図6に

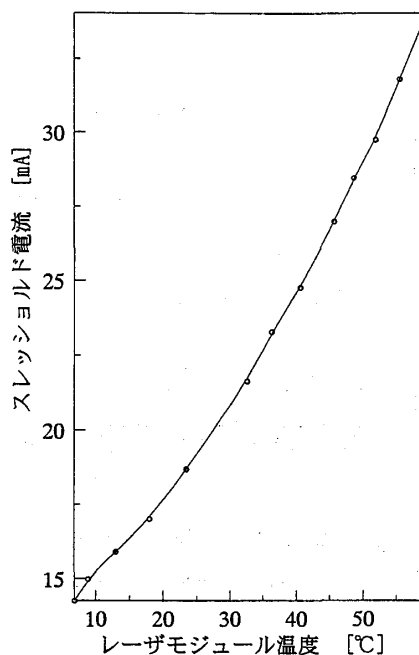


図2 レーザモジュール温度とスレッショルド電流の関係。

Fig.2 Threshold current as a function of the laser module temperature.

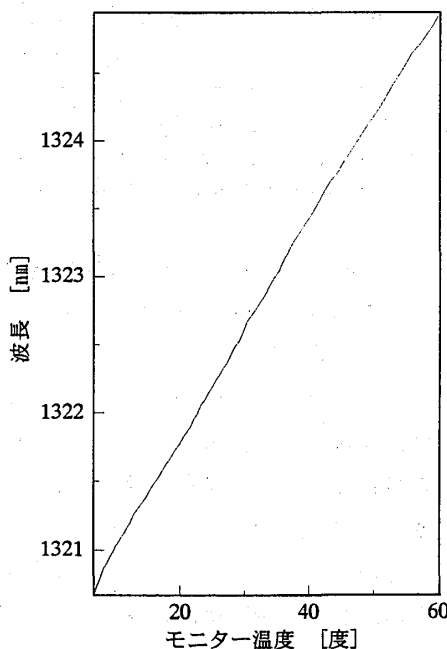


図3 モジュール温度対発振波長特性
Fig.3 Wavelength vs module temperature characteristics.

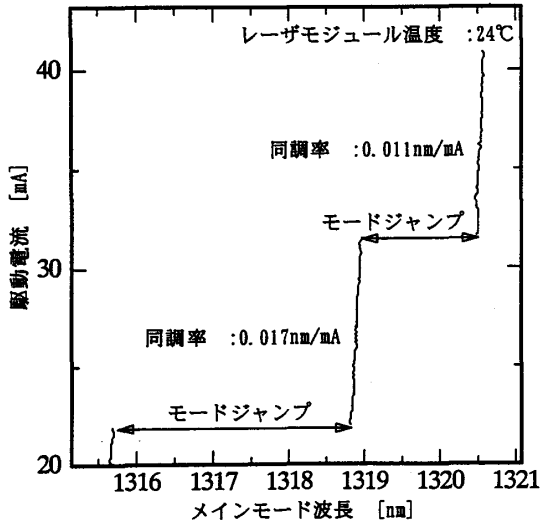


図4 駆動電流対発振波長特性

Fig.4 Injection current vs wavelength characteristics.

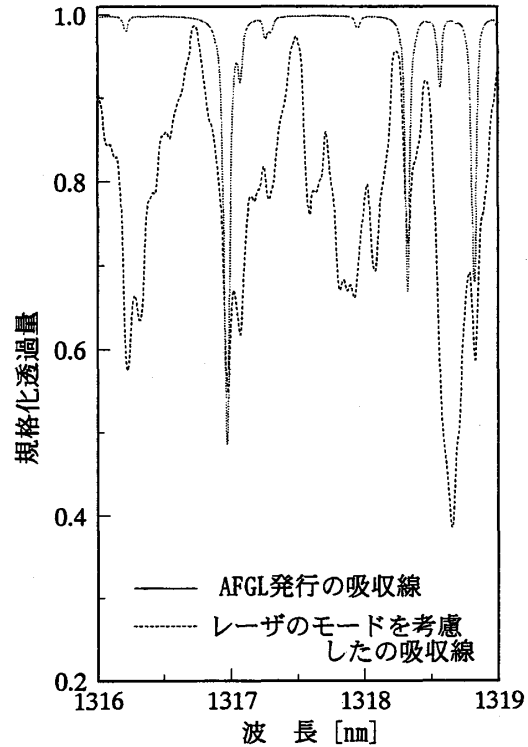


図6 サブモードの影響を受けた吸収スペクトル

Fig.6 Calculated absorption spectrum taking into account of sub-modes.

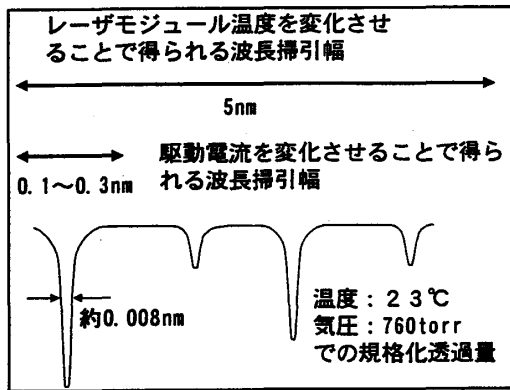


図5 連続波長掃引可能範囲と吸収線の関係
Fig.5 Position of absorption lines covered with continuous sweep range of the diode laser.

示す。シミュレーションに用いた吸収線データは、AFGL (The Air force Geophysics Laboratory) 発行の吸収線データベース⁽⁹⁾を用いた。

レーザーのサブモードを考慮したシミュレーションの結果、本来の吸収線の半値幅に比べ吸収スペクトルが非常に広くなり、また吸収の起こらない波長でも見かけ上透過量が減少し吸収線があるかのようになっている。この様にマルチモード発振するレーザーを用いた場合、吸収線の正確な測定が不可能となる。

この問題を解決するためには、適当なモードフィルタが必要であるが、本装置では、分光器を用いて主モードのみを取り出すこととした。

4. 吸収スペクトル測定

これまでの検討したレーザーの諸特性に基づき、レーザー駆動装置およびレーザーモジュール温度自動調節装置を設計製作し、水の吸収スペクトル測定を行った。実験に用いた測定系を図7に示す。

システムは、レーザー波長掃引させるための鋸歯状電圧波を発生するLSG (Laser signal generator) 回路、鋸歯状電圧波を電流に変換するためのレーザードライバー、レーザーモジュール内の温度を安定に保つためにケース内のペルチェ素子をPI (Proportional plus integral) 制御で駆動するクーラコントロール回路から成る出射系と、赤外線検出用PINフォトダイオード (NDL5405:NEC 製) と増幅回路から成る受光系で構成されている。レーザーから出射された光はファイバーを通り、対物レンズ (20倍) で集光され分光器に入射し、主モードのみが選択される。分光器を出射した主モード光は、水セル内を通り、受光器でOE変換される。受信信号はデジタルオシロスコープに取り込まれ、GP-IB経由でパソコンに送られ

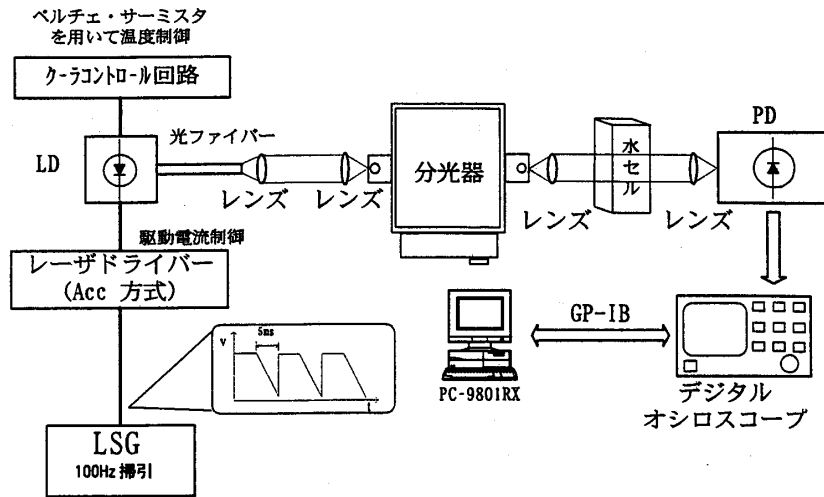


図7 実験系の概略

Fig.7 Schematic diagram of experimental setup.

る。

本装置では、LSG回路の繰り返し周波数を100Hzに設定しているが、このとき、1掃引波形について、10 μ s毎の500個のデータとして取得できる。

減衰量の検出は、水セル内に水を入れていない状態の測定データを参照データ、水セル内に水を入れた状態の測定データを透過光データとした。この透過光データを参照光データで規格化することにより、規格化透過量を算出した。

測定結果の妥当性の確認は、吸収線データベースから算出した規格化透過量と比較することによりを行った。濃度の吸収線測定を行う場合、測定結果から算出した規格化透過量の波形と吸収線データベースに基づいて算出した規格化透過量の波形が合致すればよい。本測定で使用している吸収物質は100%濃度の純水である。よって、シミュレーションで使用した濃度値は100%となる。また、その他のパラメータも測定条件と同様にして計算を行った。

図8に吸収線測定結果とシミュレーションの算出結果を示す。図の横軸の波長は駆動電流から波長に換算したものである。この結果から、測定で求めた規格化透過量とシミュレーションで求めた規格化透過量がほぼ一致しており、本装置により、吸収スペクトルが取得できることが確認できた。

5. システムの精度

現システムの濃度値の測定精度はシステム内で発生する雑音の大きさと、レーザ発振波長のずれの

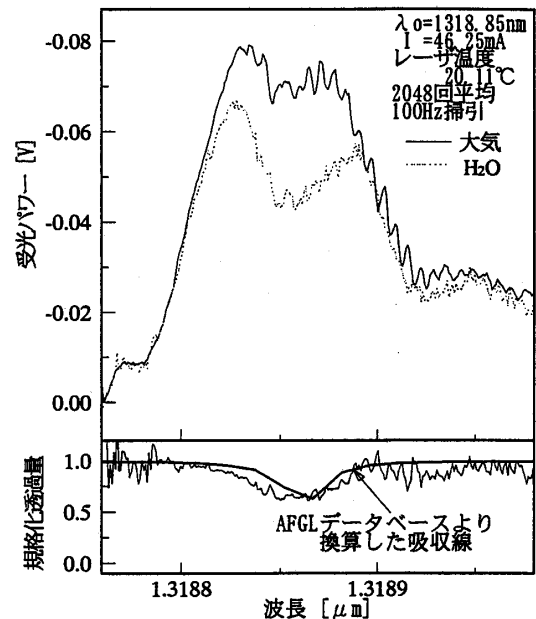


図8 水の吸収スペクトル (上段) と規格化透過量

Fig.8 Upper flame shows an absorption spectra, and the lower shows a normalized transmittance.

大きさによって決定される。

このシステムで問題となる雑音は、電気系で発生する白色雑音である。特に、受光器内で発生するのが支配的であると考えられる。そこで、受光器の白色雑音量を測定した。測定方法は、フォトダイオードの受光部をふさぎ、このときに得られる信号を受光器から発生する雑音電圧とした。測定の結果、雑音値の実効値は約 $2\mu\text{V}/\sqrt{\text{Hz}}$ であった。

この受光系の雑音が濃度値に及ぼす影響は受光パワーの大きさによって異なる。そこで受光パワーの変化に伴う検出限界濃度値を調べた。その結果を図9に示す。検出限界の定義として $SNR=1$ としている。現システムでレーザ光が水セルに入射することのできる平均パワーは、約 80nW である。図9より、出射パワーが 80nW のときの検出限界濃度値は 0.48% であることが判る。

次にレーザ発振波長のずれによる測定精度への影響について検討する。本システムでは、長時間測定を行うと、発振波長のずれが生じる。この問題が発生する要因として、分光器を主とする光学機器測定系の機械誤差に起因する選択波長のずれとクーラコントロール回路の電氣的誤差によるレーザモジュール温度の変動に伴った発振波長のずれが考えられる。そこでこれらの影響を実験により調べた。

図10は分光器の選択波長のずれとレーザモジュール温度が変動することにより生じる波長のずれの経時変化を観測したものである。これより、波長がずれる主な原因として分光器の選択波長による機械的誤差の影響が支配的であることが確認できた。因みに、レーザのモジュール温度制御誤差による波長の最大変動量は 0.0008nm であり、温度制御回路の安定性に起因する誤差は無視できることがわかった。

しかしながら、電氣的、機械的のいずれが原因にせよ、発振波長が変動すると、シミュレーションで求めた吸収線の位置と、測定で求めた見かけ上の吸収線の位置がずれ、その結果、吸収量算出値に誤差が生じる。この誤差と吸収線検出位置のずれをシミュレーションした結果を図11に示す。シミュレーションに用いた吸収線のパラメータは中心波長 1322.53nm 、温度 23°C 、気圧 760Torr である。ここで、誤差率とは、測定により求めた誤差を含めた吸収量を実際の吸収量で割ったものである。

この結果、本システムで発生する吸収量の誤差は 0.004% となった。この値は、電気系白色雑音に基づいて算出した検出限界濃度値に対して非常に微小である。

以上の考察より、本システムで検出限界濃度に大幅に影響するノイズとしては、受光系のノイズであることが確認できた。

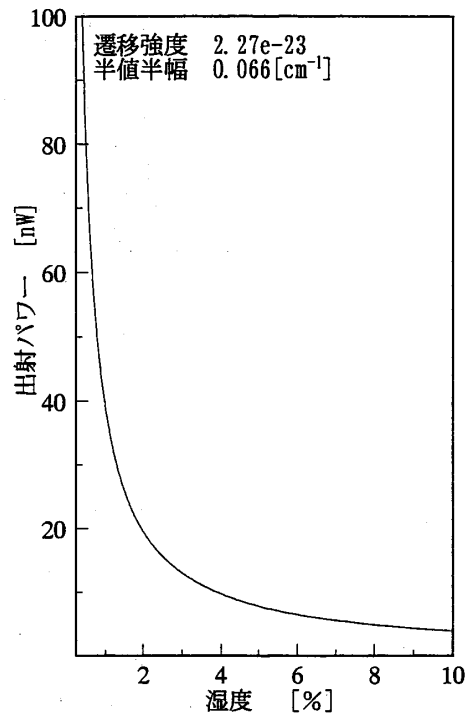


図9 レーザ出射パワと最小検出限界の関係
Fig.9 Least detection limit vs incident laser power

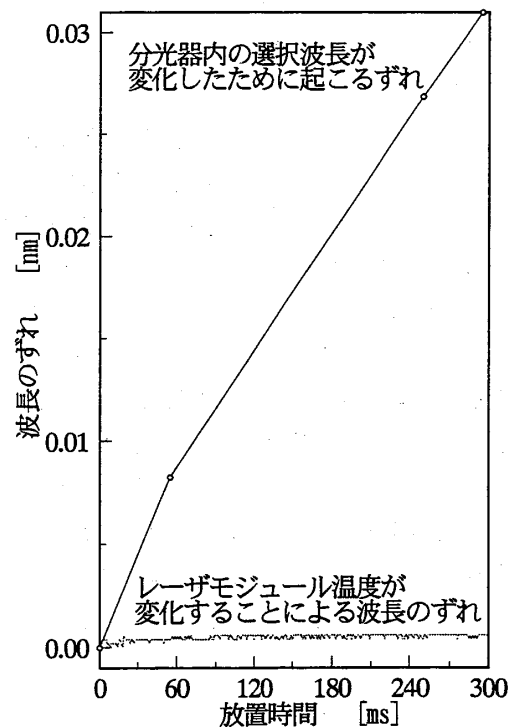


図10 発振波長のずれの経時変化
Fig.10 Wavelength drift as a function of measurement time.

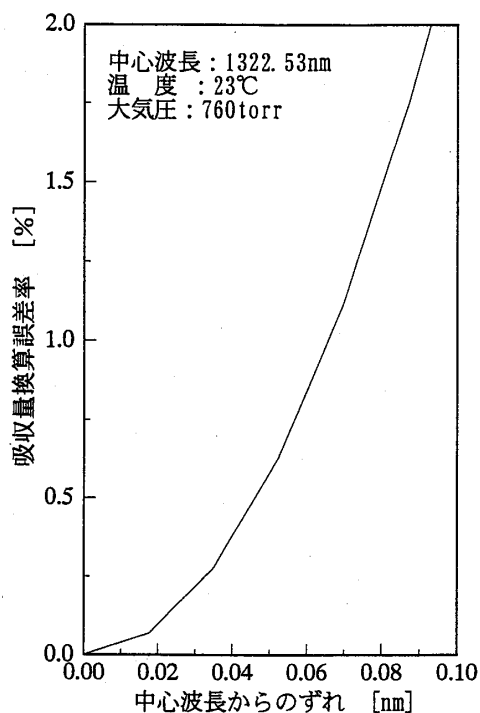


図 11 発振波長のずれと測定誤差の関係
Fig.11 Measurement error vs wavelength drift.

6. 応答速度

本装置の応答速度を規定する要因として、受光器の応答速度と、計算処理の速度が挙げられる。

本装置では、LSG 回路の掃引速度を現在 100Hz に設定しているため検出可能な速度は 10ms となっているが、最高 1ms まで掃引時間を短縮することが可能である。計算処理時間に関しては、DSP (Digital Signal Processor) を採用することで、30ms 以内とすることが可能である⁽¹⁰⁾。従って、将来的には、数十 ms オーダでの濃度値検出が可能であると考えている。大気の揺らぎに追従するシステムとしての使用可能である。

7. むすび

通信用半導体レーザを光源とした吸収分光分析装置の開発を目的として、1.3 μ m 帯で発振するファブリペロー型通信用半導体レーザ (NDL5717P) を対象に検討したところ、温度対発振波長では 5nm、駆動電流対発振波長では 0.1~0.3nm の連続波長掃引が確認できた。これらの値は、吸収線の半値幅が約 0.001nm であるのに対し十分に吸収線の掃引が可能

な幅である。

これを踏まえて、吸収分光装置のプロトタイプを製作し、水を測定対象として、吸収量の測定を行った。その結果、濃度の算出までは至らなかったが、理論通りの吸収スペクトルを測定することができた。

このシステムの精度および応答速度について検討を行った結果、製作したシステムは水分量測定に使用できる精度を持つことが確認できた。また、応答速度に関しては、計算処理に DSP を用いることで、将来的に数十 ms オーダでの濃度値検出が期待できる。このように高速に湿度計測が行えれば、例えば「すばる」に代表される大口径、高分解能光学望遠鏡を格納するドーム内の湿度センサーとしての利用が考えられる。光学望遠鏡の分解能はドーム内の湿度の変動に依っても低下するので、大気の流れをリアルタイムに測定し、その計測値に基づき主鏡の曲率を自動的に補正する方法が考えられているが⁽¹¹⁾、そのためには、応答速度の速い湿度計が必要となるためである。

今後の展望として、先に述べた DSP の採用に加え、現在、光源としてシングルモード発振する DFB (Distributed Feedback) レーザに変更することに取り組んでいる。このレーザが光源として使用できれば、分光器は不要となり、パワーの増加による精度の向上やシステム規模の縮小が図れる。

なお、本研究の一部は平成 8 年度卒業研究として行われた。実験に協力していただいた学生諸氏に謝意を表す。

参考文献

- (1) J. Reid, J. Shewchun, B. K. Garside and E. A. Ballik, "High sensitivity pollution detection employing tunable diode lasers," *Appl. Opt.* 17(2), 300-307 (1978).
- (2) A. Fried, J. R. Drummond, B. Henry, and J. Fox, "Versatile integrated tunable diode laser system for high precision: application for ambient measurements of OCS," *Appl. Opt.* 30(15), 1916-1932 (1991).
- (3) P. Werle, B. Scheumann, J. Schandl, "Real-time signal-processing concepts for trace-gas analysis by diode-laser spectroscopy," *Opt. Eng.* 33(9), 3093-

- 3105 (1994).
- (4) J. Roths, T. Zenker, U. Parchatka, F. G. Wienhold, and G. W. Harris, "Four-laser airborne infrared spectrometer for atmospheric trace gas measurements," *Appl. Opt.* **35**(36), 7075-7084 (1996).
- (5) Naoki Kagawa, "Development of Tunable Diode Laser Absorption Spectrometry for Atmospheric Gas Concentration Measurement," The Graduate School of Natural Science and Technology (Doctor Course) Okayama University, 33-63 (1993).
- (6) Kinpui Chan, Hiromasa Ito, and Humio Inaba, "Absorption measurement of $\nu_2+2\nu_3$ band of CH_4 at $1.33\mu\text{m}$ using an InGaAsP light emitting diode," *Appl Opt.* **22**(23), 3802-3804(1983).
- (7) Sebastien Tranchart, Ikhlef Hadj Bachir, and Jean-Luc Destombes, "Sensitive trace gas detection with near-infrared laser diodes and an integrating sphere," *Appl Opt.* **35**(36), 7070-7074(1996).
- (8) 末松安晴, "半導体レーザと光集積回路", p174 (1993).
- (9) L.S.Rothman, R. R. Gamache, *et al.*, "The HITRAN database: 1986 edition," *Appl Opt.*, **26**(19), 4058-4097(1987).
- (10) 平岡, 香川ほか, "大気中微量ガス濃度測定のための高速波数掃引方式TDLASシステムの開発", 電学論, **117-C**(11) (掲載決定) .
- (11) 西原, 家ほか, "ドーム内シーイング測定装置の開発", 平成5年度文部省科学研究費補助金総合研究(A)研究会集録「擾乱大気中の波動伝搬と補償光学」, 17-22(1991).