

1.3 μm 帯分布帰還型レーザを光源とした高速波数掃引方式 LAS システムによる水蒸気の吸収スペクトル測定

香川 直己*

Monitoring of Water Vapor Absorption Spectra Using a Quick Scanning LAS System with a
1.3- μm DFB Laser Diode

Naoki KAGAWA*

ABSTRACT

The distributed feedback (DFB) laser is a useful light source for the laser absorption spectrometry (LAS) because of its property of single-mode light emission and of continuous tunability depending on temperature control.

In order to develop a portable quick scanning laser absorption spectrometry (LAS) system, I employed the laser and tuned its wavelength by a periodic current wave composed of serial saw-shapes. One scanning of absorption lines takes the constructed system 5ms. A feasibility test for the spectrometry has monitored water vapor in the atmosphere indoors. An H_2O absorption spectrum was obtained with a 60-m round trip optical path. The absolute absorption of the spectrum almost agreed with its theoretical value.

キーワード：DFB レーザ，1.3 μm 帯，吸収分光分析法，高速掃引，水蒸気スペクトル

Keywords: DFB laser, 1.3 μm -band, absorption spectrometry, quick scanning, water vapor spectrum

1. まえがき

筆者は、7 μm 帯で発振する鉛塩半導体レーザを光源とした可同調半導体レーザ吸収分光分析装置 (tunable diode laser absorption spectrometer: TDLAS) の開発に従事し、メタン (CH_4)、亜酸化窒素 (N_2O) などの温室効果ガス濃度の非接触測定を行ってきた[1]。この波長域は、強いメタン吸収線があり、メタンの吸収スペクトルが取得しやすいが、一方、レーザを発振させるためには、クライオポンプやデュア瓶による素子の深冷却が必要となる。そのため、装置全体の小型軽量化が困難であり、その場 (*in situ*) 計測用の装置としての限

界がある。そこで、現在、常温発振し、かつ廉価である 1.3 μm 帯通信用半導体レーザを光源として、可搬型 TDLAS の開発を行っている。

以前の報告[2]では、ファブリペロー型のレーザを光源とした実験結果について述べたが、本質的にマルチモード発振するため、ガスの吸収線を正確に掃引するためには、モードフィルタによるサブモードの抑圧が必要となる。そこで、分布帰還型 (distributed feedback: DFB) 半導体レーザを光源として使用することを試みた。DFB レーザは、光導路を形成する活性領域に接して設けられた周期構造の間隔に依って定まる単一波長発振を生じる[3]。また、動作温度を変化して数 cm^{-1} 程

度にわたり安定な発振波数同調を行うことができるため [3], レーザ吸収分光分析法 (laser absorption spectrometry : LAS) における光源として有効である [4,5].

今回は, 可搬性だけでなく吸収線掃引の高速化を目的として, DFB レーザの波長同調を動作温度ではなく, パルス状の駆動電流により行うことを試みたので報告する. 加えて, 大気中の水蒸気を対象に行った吸収スペクトル取得実験の結果について述べる.

2. DFB レーザ FU-427SDF の諸特性

2. 1 レーザモジュール

本装置の光源として, 1.3 μm 帯で発振する通信用 DFB レーザモジュール FU-427SDF (三菱電機) を使用した. 図 1 にモジュールの概略を示す. このモジュールは DFB レーザ素子と, 光パワをモニターするためのフォトダイオード (PD) が内蔵されている. レーザ光線はシングルモードファイバを介して出力される. ファイバー端における光パワは 2mW 以下である.

先に述べたように, レーザの発振波数は動作温度に依って変化するため, 目的とする発振波数を得るためには, モジュールの温度を安定に保つ必要がある. そこで, ベルチエ素子 (FPH1-12708:フジタカ) を貼り付けた真鍮製ブロック (40mm \times 40mm \times t30mm) をヒートシンクとし, その中にモジュールを埋め込み, 動作温度を調節した. 動作温度は, モジュールに密着するようにブロック内に差し込んだサーミスタで検出した.

2. 2 レーザの発振特性

半導体レーザの発振しきい値は動作温度にほぼ比例して増加する. 観測の結果, モジュール温度 30 $^{\circ}\text{C}$ でしきい値電流 (I_{th}) は約 10mA, 0 $^{\circ}\text{C}$ で約 5mA であった.

次に, 光スペクトラムアナライザ (HP71405B) を用いて, レーザの同調特性の測定を行った. 図 2 はレーザ駆動電流を 46.250mA に設定した場合のモジュール温度対レーザ発振波長特性である. 図のように, 5 \sim 20 $^{\circ}\text{C}$ の温度の増加に比例して, 発振波長は長波長側

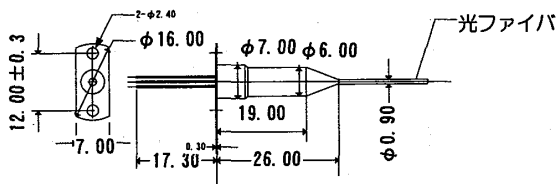


図 1 DFB レーザモジュール FU-427SDF

Fig.1 DFB laser module FU-427SDF.

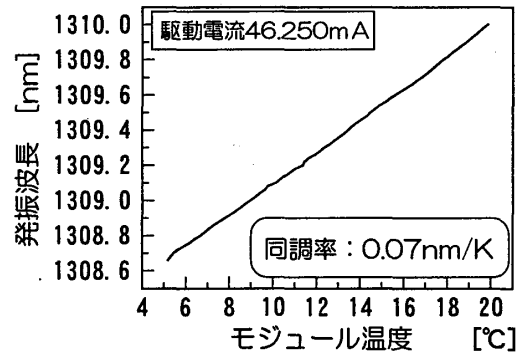


図 2 モジュール温度対発振波長特性

Fig.2 Wavelength vs. module temperature characteristics.

に 1.4nm 変化する. この特性から算出した温度同調率は 0.07nm/K である.

図 3 はモジュール温度を 12.4 $^{\circ}\text{C}$ に設定した場合の駆動電流対レーザ発振波長特性である. この特性は, やや上に凸の曲線を描きながら, 駆動電流の増加に伴って長波長側にシフトして行く. 駆動電流 25mA 付近での電流同調率は 6nm/A である.

3. 水蒸気の吸収スペクトル測定

3. 1 実験装置

図 4 に実験装置の概略構成図を示す.

電気系の構成は以前の報告 [2] と同じであり, レーザの駆動には, 発振波長を繰り返し掃引させるために, 図中に示すような 1 周期 10ms の鋸歯状電流波を用いた. この波形により, レーザは 1 回 5ms の波数掃引を 5ms 毎に行う. また, 大気伝搬後のプローブ光の受光パワを規格化するために, モジュールに内蔵された PD

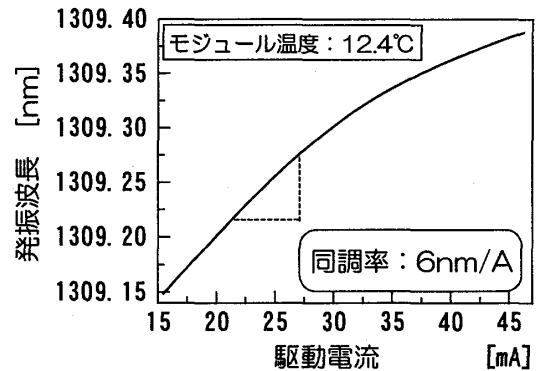


図 3 駆動電流対発振波長特性

Fig.3 Wavelength vs. injection current characteristics.

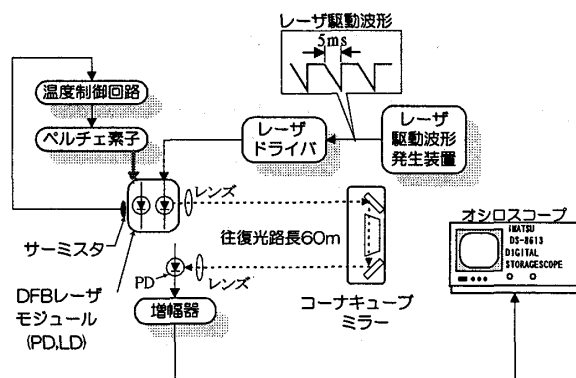


図 4 実験系の概略

Fig.4 Schematic diagram of experimental setup.

でレーザ出力パワーを同時に測定する。

出射光学系および受信光学系は1台のアルミハニカム製光学定盤上に固定配置されている。ファイバから出射されたレーザビームは、ファイバコネクタ付のコリメートレンズユニットで平行ビームに整形され、大気中に出射される。レーザビームは直交する3枚の平面ミラーで構成されるコーナキューブミラーで反射され、出射端に戻る。レーザビームは平凸レンズで集光され赤外線検出用 PIN フォトダイオード (NDL5405:NEC) で受信される。往路と復路の光軸間隔は 100mm である。

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る。

3. 2 連続可同調範囲と H₂O 吸収線の関係

第2章で示したレーザの発振特性に基づき、DFBレーザ FU-427SDF の連続波数掃引可能範囲と H₂O 吸収線との関係を求めた。図5は動作温度と駆動電流によってレーザの連続同調ができる発振波長領域とそこに含まれる H₂O 吸収線を示したものである。図中斜めに延びる2本の破線は図3の駆動電流対発振波長特性を満足する駆動電流の下限値 (15.4688mA) と上限値 (46.250mA) に対するレーザ発振波長特性をレーザモジュール温度の関数として描画したものである。また、実線は吸収線データベース[6]に基づき算出した H₂O による 1.3μm 帯レーザ光の規格化透過量である。透過量の計算に用いたパラメータは気圧 760Torr (1 気圧)、気温 20°C、湿度 100% とし、レーザ伝搬光路長を 100m とした。図に示すように、レーザモジュール温度と駆動電流の操作により掃引することができる発振波長域には大小約 8 本の吸収線が存在するが、特に顕著なものは、それぞれ中心波長を 1309.0377 nm, 1309.2170 nm, 1309.6772 nm, 1309.9665 nm に持つ 4 つの吸収線で

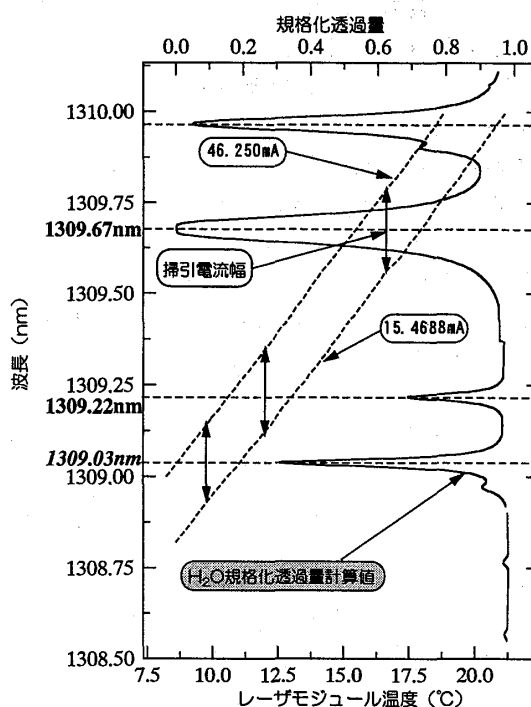


図 5 DFB レーザ FU-472SDF の連続可同調範囲に含まれる H₂O 吸収線

Fig.5 Theoretical H₂O absorption lines covered with the continuous tuning region of the DFB laser FU-472SDF.

ある。これらの吸収線の半値幅 b_L 、吸収係数 α を表1に掲載する。半値幅 b_L は 760Torr, 296K における値であり、また、単位 cm^{-1} (カイザー) は波長 ($\lambda[\text{cm}]$) の逆数の次元を持つ。このうち、吸収線幅と電流掃引の関係から、吸収線全体を走査することができるものは、1309.0377nm, 1309.2170nm に中心を持つ2本である。加えて、吸収量の大きさから、測定対象として、中心波長 1309.0377nm の吸収線を選んだ。モジュール温度を約 9.80°C に設定し、駆動電流を 15.4688mA ~ 46.250mA まで掃引すれば、この吸収線の走査することができる。

表 1 掃引可能な H₂O 吸収線

Table 1 Line parameters of dominant absorption lines.

中心波長[nm]	半値幅[cm^{-1}]	吸収係数[m^{-1}]
1309.0377	0.056	0.1064
1309.217	0.062	0.0319
1309.6772	0.071	0.9059
1309.9665	0.075	0.2585

3. 3 吸収線測定実験

本学3号館3階の廊下にて、1997年11月から1998年6月にかけて、水蒸気の吸収スペクトルの測定実験を数回行った。ここでは、11月28日と6月11日に行った実験について述べる。

実験を行った廊下は、幅1.8m高さ約2.5m、長さ約35mであり、廊下の一端に光学系を固定した光学定盤を設置し、レーザー発射端から30m離れた位置に三脚上に固定したコーナーキューブ鏡を置き、往復光路長60mを確保した。また、レーザービームは床上約1mの高さを床面に平行に伝搬するように調節した。

表2は11月28日と6月11日の実験中における廊下の平均温度と平均(相対)湿度である。これらの値は、廊下の中央に設置した乾湿球型湿度計で計測したものである。

図6は11月の実験結果より求めた、H₂O吸収スペクトルと、その存在波長領域における理論スペクトルである。横軸は波長、縦軸は絶対吸収量(χ)である。直接得られる実験結果は横軸が時刻、縦軸は受信パワーであるが、横軸は設定したモジュール温度と掃引電流の値から図2および図3の関係を用いて波長に換算した。また、縦軸の絶対吸収量はランベルト-ベールの法則

$$P_t = P_i \exp[-\chi] \dots \dots \dots (1)$$

に基づいて計算した。本実験装置では、P_tはモジュールに内蔵されたフォトダイオードで検出した出射光パワーであり、P_iは大気透過後の受信光パワーである。従って、絶対吸収量は実験データに対して

$$\chi = -\ln \frac{P_t}{P_i} \dots \dots \dots (2)$$

の演算を行い算出している。

図中において、「加湿なし」と表示された細実線で描かれたスペクトル群は表2に示した気温、湿度状態に保たれた、安定な大気条件で測定されたものである。式(2)に基づく計算の結果、これらの時の絶対吸収量は約0.2となった。

実線で示す理論スペクトルは表2に示したパラメータを用いて計算したものであるが、両者を比較すると、吸収スペクトルの中心波長、スペクトル幅、さらに、絶対吸収量の相違が生じている。このうち、中心波長のずれは約0.07nmであり、これはレーザー発振特性の測定誤差および波長変換演算の誤差に起因するものと考えられる。また、スペクトル幅の増大はレーザーの発振スペクトル線幅に依存するものであると思われるが、これについては測定できておらず、現在のところ詳細は不明である。さらに、絶対吸収量の相違であるが、理論スペクトルの絶対吸収量は吸収線の中心で0.1弱となっており、実験結果は理論値の約2倍となっている。この原因として受信光パワーのゼロレベルの設定誤差、光学的雑音(エタロンフリンジ[7])による受信信号の歪み、空間的な測定次元の違いなどが考えられる。これらの中で、ゼロレベルの設定誤差および光学的雑音による受信光の歪みを生じると、絶対吸収量換算された吸収スペクトルはベースラインの傾斜やオフセットを含むことになる。また、測定次元の相違であるが、乾湿球型湿度計が廊下内のある代表地点の湿度を計測しているのに対して、本測定装置は光線が伝搬する光軸上の空間平均化された湿度を計測する点に原因があることも考えられる。

測定結果および乾湿球型湿度計の指示値から水蒸気の絶対湿度を算出した結果、本装置で約3.14%、乾湿球型湿度計で約1.17%となり、本装置に依る結果が約2.7倍大きくなった。本装置の測定結果からの絶対湿度の算出に際しては、

$$\chi = \alpha CL \dots \dots \dots (3)$$

の関係において、表1に示した吸収係数(α)および実験により得た絶対吸収量、光路長(60m)を代入し、Cを求めた。また、乾湿球型湿度計の示す相対湿度から

表2 実験時の気温と湿度

Table 2 Temperature and humidity at experiments.

実験日時	気温[度]	湿度[%RH]
1997/11/28 23:00~11/29 8:00	19	54.3
1998/6/11 23:00~6/12 8:00	25	84

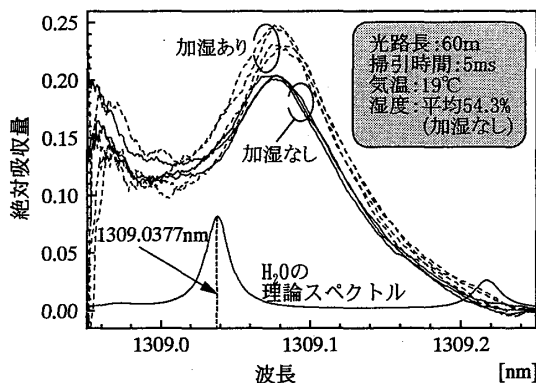


図6 H₂Oの測定スペクトルと理論スペクトル
Fig.6 Measured absorption spectra and theoretical spectrum of H₂O.

絶対湿度の換算には、アントワンの式を用いた。

また、図6中において、「加湿あり」と表示された破線のスペクトル群は廊下内で加湿器を稼働させて測定したものである。加湿器は光学定盤とコーナキューブミラーの中間地点に、蒸気が直接光軸を遮らないように設置した。この図より、吸収線のピーク値が上昇し、また、ばらつきが大きくなっていることが分かる。これらの吸収スペクトルは5ms毎の10回の連続測定でえたものであり、このことから、この実験結果は、加湿したことによる平均湿度の上昇と、湿度変動を反映しているものといえる。

図7は6月11日の測定により得られた実験結果である。測定対象とした吸収線および測定条件は11月の実験と同様である。図7のうち、上の図は出射光パワーと大気伝搬後の透過光パワーをそれぞれの最大パワーで規格化して示したものである。この波形はレーザー駆動電流の鋸状波のランプ部分に対応して発生したレーザー出力パワーの変化を示している。これらを基に絶対吸収量を計算して図示したものが下の図である。ただし、横軸はスペクトル掃引の経過時間である。吸収スペクトルのピーク波長における絶対吸収量は0.45であり、11月の結果の約2.25倍である。式(3)を用いて、実験結果から絶対湿度を算出すると、7.102%となった。ま

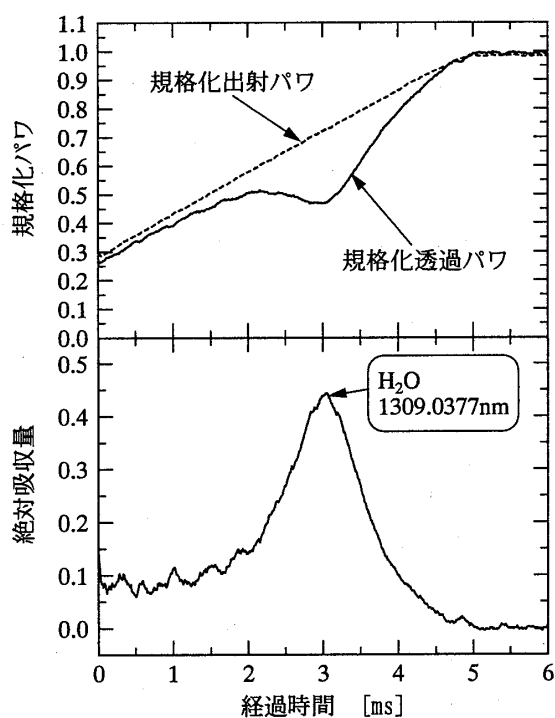


図7 6月の測定により得たH₂O吸収スペクトル
Fig.7 A H₂O absorption spectrum measured in June.

た、表2に示した乾湿球型湿度計の示す相対湿度から絶対湿度を計算した結果3.140%となり、11月の結果同様に、実験結果から算出した相対湿度のほうが2.7倍大きくなった。

表3に11月および6月の実験から得られた絶対湿度を示す。計測方式について比較すると、11月、6月のいずれの結果も本装置で測定した結果は乾湿球型湿度計の指示値から算出した絶対湿度よりも2.7倍大きくなっている。しかし、測定日に関して比較すると、いずれの測定方式でも6月の絶対湿度が11月の絶対湿度よりも2.25倍大きくなっている。このことから、現在のところ、本装置は湿度変化を観測できるといえる。精度については検討するにいたっていないが、本実験結果から、本装置では現在のところスパン誤差が支配的であると考えられる。

3.4 チャープ現象を用いた吸収線測定

半導体レーザーを矩形の電流波で駆動するとレーザー素子の熱的過渡応答特性により、高速に発振波長を変化させることができる[8]。この現象をチャープ現象と呼ぶが、本装置で使用するDFBを用いて、チャープ現象による吸収スペクトルの測定実験を行った。

実験装置の配置、および実験場所は3.3節と同じである。測定は、6月11日に行い、したがって、測定環境の温度、湿度は表2に示す通りである。レーザー駆動電流は基本周波数100Hzのパルス列を用いた。

図8に最大受光パワーで規格化した出射光パワーと60mの大気伝搬後の透過光パワーとそれらに基づき算出した吸収スペクトルを示す。横軸は経過時間であるが、これより、約0.5msで吸収スペクトルが取得できている。吸収スペクトルの絶対吸収量は約0.45であり、図7に示したものと同一吸収スペクトルが取得できていることが分かる。使用したDFBレーザーの立ち上がり時間は約0.3nsであり、広帯域な駆動、受信回路を用いれば、さらに高速なスペクトル掃引が可能といえる。しかし、掃引の高速化に伴うシステムの広帯域化によって、電氣的雑音が増加することになるため、測定速度と精度の関係から計測目的に応じた最適な掃引時間を決定する必要がある。

表3 絶対湿度

Table 3 Absolute humidity.

方式	11月	6月
DFBによる吸収分光法	3.140%	7.102%
乾湿球型湿度計	1.166%	2.602%

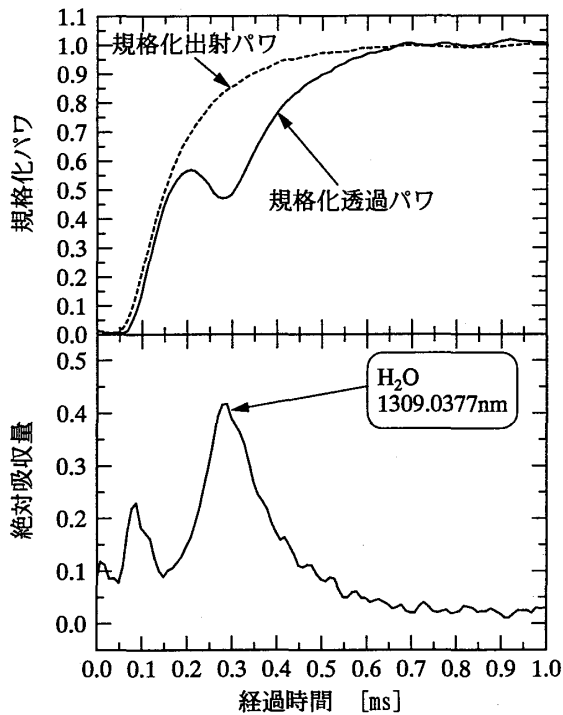


図 8 半導体レーザーのチャープ現象を用いて取得した吸収吸収スペクトル

Fig.8 An absorption spectrum obtained with chirping of DFB laser.

4. むすび

本論文では、吸収分光分析法に $1.3\mu\text{m}$ 帯で発振する分布帰還型 (DFB) 半導体レーザーを使用し、システムの可搬性だけでなく吸収線掃引の高速化を目的として、DFB レーザの波長同調を動作温度ではなく、パルス状の駆動電流により行うことを試みた。

製作した装置を用いて、大気中の水蒸気を対象に行った吸収スペクトル取得実験を行い、絶対湿度を算出し、乾湿球型湿度計の指示値から求めた絶対湿度と比較したところ、本装置の結果は乾湿球型の結果の約 2.7 倍となった。しかし、測定時期の違いによる絶対湿度の変化分については、乾湿球型湿度計で計測したものと同一となった。このことより、測定精度については良好な結論を得ることができなかったが、湿度の変化

を計測できており、現状では、スパン誤差が支配的であることが分かった。

また、チャープ現象によっても吸収スペクトルを取得できることを確認した。

今後は、誤差の低減を図り、また、測定のリアルタイム化を実現するために、湿度 (濃度) 算出過程の自動化を進めて行く予定である。

なお、本研究の一部は平成 9 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] 平岡孝之, 香川直己, 王 明, 和田修己, 古賀隆治: 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, 電気学会論文誌. **117-C**, 1670-1676, (1997).
- [2] 香川直己, 橋爪泰史: $1.3\mu\text{m}$ 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, 福山大学工学部紀要. **21**, 9-16, (1997).
- [3] 稲葉文男: 新版レーザー入門, 電子情報通信学会, p.136, (1979).
- [4] P.Cancio, C. Corsi, F.S. Pavone, R.U. Martinelli, R.J. Menna: Sensitive detection of ammonia absorption by using a $1.65\mu\text{m}$ distributed feedback InGaAsP diode laser, *Infrared Physics & Technology*, **36**, 987-993(1995).
- [5] H.Tai, Kazushige Yamamoto, Masahiko Uchida, Susumu Osawa, Kiyoji Uehara: Long-Distance Simultaneous Detection of Methane and Acetylene by Using Diode Lasers Coupled with Optical Fibers, *IEEE Photon. Technol. Lett.*, **4**, 804-807(1992).
- [6] L.S.Rothman, R. R. Gamache, *et al.*: The HITRAN database: 1986 edition, *Appl. Opt.*, **26**, 4058-4097(1987).
- [7] Naoki Kagawa, Osami Wada, Ryuji Koga: Suppression of the etalon fringe in absorption spectrometry with an infrared tunable diode laser, *Opt. Eng.* **36**, pp.2586-2592, (1997).
- [8] Naoki Kagawa: Development of Tunable Diode Laser Absorption Spectrometry for Atmospheric Gas Concentration Measurement, Doctoral Thesis of The Graduate School of Natural Science and Technology (Doctor Course) Okayama University, p.87, (1993).