

中間赤外域での高分解能レーザー分光

笠羽 康正・中川 広務・青木 翔平・村田 功・坂野井健・岡野 章一

High Resolution Laser Spectroscopy in Mid-Infrared

Yasumasa KASABA, Hiromu NAKAGAWA, Shohei AOKI, Isao MURATA, Takeshi SAKANOI and Shoichi OKANO

Atmospheric circulations, variations, and evolutions have the key for the understanding of the terrestrial and planetary environments. For such studies, high resolution spectroscopy is essential to identify the profiles of key molecules migrated in many kinds of molecule absorption lines. This paper introduces the current status of laser spectroscopy technique in mid-IR range.

Key words: mid-infrared, tunable laser spectroscopy, laser heterodyne spectroscopy, quantum cascade laser

1. 中間赤外域における高分解能分光

サブミリ波～中間赤外線域は、分子の振動・回転遷移に伴う強い吸収線を豊富に有する。比較的低温の「分子大気」の変動・循環・進化の研究、例えば地球大気の汚染物質や温室効果気体の消長・循環や惑星大気の組成・構造・運動の追究には、この観測能力が決定的となる。特に重要となるのは、微量成分の観測においてである。これらは(1) 下端：地殻・内部・人為による湧出や吸収(SO_2 , CH_4 , 同位体等), (2) 上端：紫外線・宇宙線による生成や消滅(O_3 , HO_x , NO_x , CO 等)により時間的に増減し、その空間移動は特定空気塊の追跡を可能とする。

微量成分の吸収は、微量であるがゆえに弱い。その観測は大量にある大気主成分(例えば CO_2 , H_2O 等)による「吸収線のすだれ」によって阻害されやすい。惑星・天体大気を地上から観測する場合は、地球の大気主成分も重畳する。これら大量の「すだれ」をかいくぐるには、高分解能分光でその合間をぬう必要がある($\lambda/d\lambda \geq 10^4$)。また、圧力ブロードニングによる高度分布の導出や、ドップラー効果による大気運動の検出では、吸収線形状を分解するためさらに高分解能が必要である(前者： $\lambda/d\lambda \geq 10^5$, 後者： $\lambda/d\lambda \geq 10^{5-7}$)。

このような手法として、サブミリ波では「ヘテロダイン方式」が取られる。これは信号電波を局部発振電波と混合し、超伝導 SIS ミキサーにより中間周波信号を出力する。すでに 300～800 GHz 帯($\lambda: 1000\sim 350\ \mu\text{m}$)で $f/df > 10^6$,

中間周波数 3 GHz が実現されている。ただし、電気双極子成分をもたない分子の観測は難しく、また波長が長い場合、空間分解能を得るには大口径ないし干渉計を要する。

一方、周波数が 1.5～2 桁高い中間赤外域($\lambda: 20\sim 5\ \mu\text{m}$)では、より広範な分子の観測が可能であり、また小口径鏡でも数秒程度の空間分解能が得られる。この領域では、「分散素子(エシエル)分光」および「フーリエ変換分光(FTIR)」が主流である。東北大学では、可視・近赤外(1～5 μm)では前者で惑星大気観測を行うとともに分光器($\lambda/d\lambda \sim 4 \times 10^5$)を独自開発し、中間赤外域では後者を地球成層圏の微量成分観測で用いている。しかし双方とも、基本的に波長分解能が分光器サイズと正相関する。電波域並みの高分解能装置は数メートル級となり、大学研究室規模では手に負えない。また惑星探査機への展開を企図する際、「巨大・重量級」は致命的である。

波長分解能に妥協せず小型化可能な手段として、「ファブリー・ペロー分光」と「レーザー分光」がある。本稿は後者に絞り、その概況、およびわれわれの活動を紹介する。

2. レーザー分光と量子カスケードレーザー

レーザーによる高分解能分光には次の2つの手法がある。*In-situ* 観測では波長掃引分光、すなわちレーザーを波長掃引しつつ測定対象へ照射し、透過・反射スペクトルを得る(図1)。リモート観測ではヘテロダイン分光、すなわちレーザーを局部発振光として安定発振させ、信号光と重畳して得られる光ビートのスペクトルから分光情報を取得

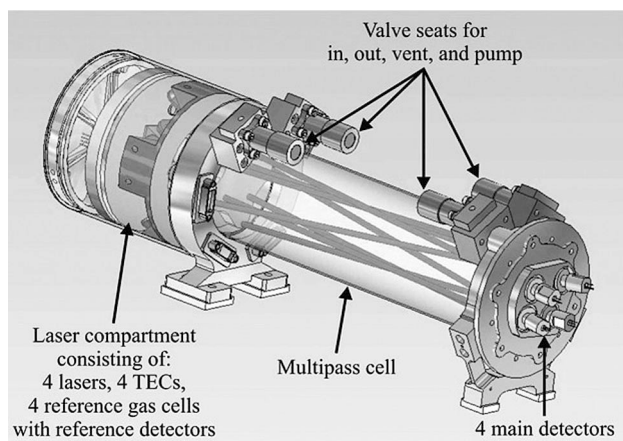


図1 火星着陸器 Mars Science Laboratory に搭載される *in-situ* チューナブルレーザー分光器 TLS⁴⁾。

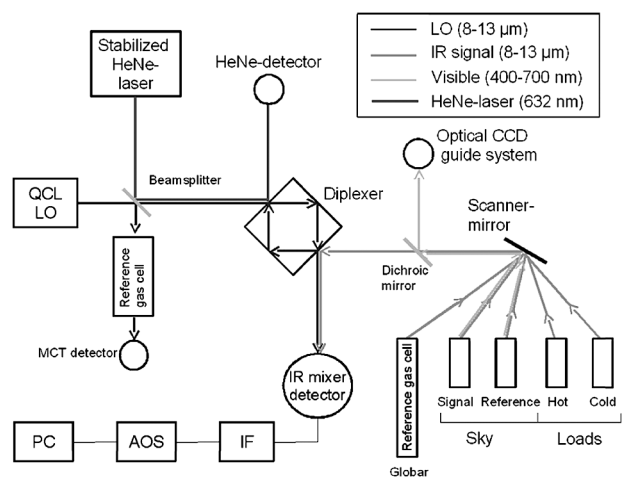


図2 ケルン大学レーザーヘテロダイン分光器システム⁸⁾。

する(図2)。双方とも波長分解能はレーザー光の波長幅・波長安定度で決定される。装置の大きさとは直結しないため、原理的に小型・軽量で高分解能分光システムを構築できる。

共通する技術課題は「小型・省電力で狭波長幅・高波長安定」なレーザーである。東北大学では惑星観測への展開を期して1980年代末からこの開発に取り組んだが、採用可能なレーザーには次の課題があった。(1) ガスレーザー：強度・安定度は申し分ないが、大型・大電力である。波長範囲はCO₂等の封入ガスの発振波長に限られ、波長連続掃引も原理的にできない。(2) 半導体レーザー：pn接合によるレーザーは、可視・近赤外域同様に小型・省電力で安定発振する。しかし発振強度が弱く(数十μW程度)、また狭バンドギャップとなる中間赤外域では熱キャリア影響排除のため極低温が必須となる。東北大学では、広対象の分光が可能となる後者で分光器を開発し¹⁾、国内・極地等で地球大気観測に供した²⁾。しかしより高い

S/N比を要する惑星用としては発振強度が足りない。

隘路を打開したのは、2000年代中盤に実用化された量子カスケードレーザーである。これは、InGaAs/InAlAs等の超格子で形成されるサブバンド間遷移を用いることで、より大出力が得られ、また極低温冷却を要しない。国内では東北大学電気通信研究所等で本レーザーの研究開発が行われ³⁾、毎秋仙台で研究会がもたれている。本研究会に参加している浜松ホトニクスから製品供給もされ、5~12μm帯の小型波長可変レーザーがこの数年で入手可能となった。

3. *In-situ* 観測：波長掃引型の惑星大気レーザー分光器

この方式は、波長可変レーザーをガスセルに通して検出器に導くシンプルな構造である。この種の「惑星大気 *in-situ* 高分解能分光器」は、2011年打ち上げ予定の米 Mars Science Laboratory 着陸機(図1⁴⁾)に搭載される Tunable Laser Spectrometer (TLS) が初となる。2000年代初頭に地上望遠鏡(FTIR： $\lambda/d\lambda \sim 10^6$)および欧州 Mars Express 探査機(フーリエ分光器： $\lambda/d\lambda \sim 10^{3-4}$)が発見したCH₄の起源解明等を目指すもので、対象ごとに多数の波長可変レーザーを搭載し、また1hPa以下(地球成層圏：高度~35km相当)と薄い火星大気中で微量成分を検出すべく、加圧システムも設けた巨大システムである。国内では名古屋大学太陽地球環境研究所で、この方式による分光器で都市大気・森林中のCO₂同位体比(¹³C/¹²C, ¹⁸O/¹⁶O)観測が行われつつある⁵⁾。

これらで使われるシングルモード発振タイプ(DFB)レーザーは、発振波長を加熱による素子長変化によって行うため、可変幅は素子の熱膨張率で制約され、1%程度にとどまる。これが多数レーザーの搭載が必然となる理由である。単一レーザーのみの小型システムで広波長域を観測可能とするため、われわれはケルン大学と協力し、浜松ホトニクスのマルチモード発振タイプ(non-DFB)レーザーに外部共振器を結合した「広帯域・狭波長幅・高波長安定光源」の開発に着手している。なお、より簡便な「中分散ガス検出器」は、小型可搬の化学物質検出・大気モニター等での需要を目指して、各所で急速に開発が行われている。

4. リモート観測：レーザーヘテロダイン分光

高感度(ショット雑音限界)、高分解能($\lambda/d\lambda \geq 10^{6-7}$)を実現可能なリモート赤外線分光手法として、ヘテロダイン分光方式が有力な手段であることは古くから指摘されてきた⁶⁾。この開発は国内外で広く行われてきたが、現在まで粘り強く進めてきたのはNASA/GFSC、ケルン大学、東北大学である(最近オックスフォード大学も着手した)。3チームは共同で開発・観測を進めつつあり、今夏には東

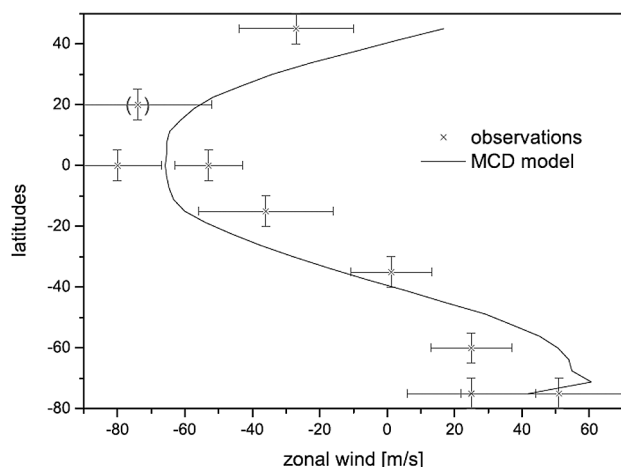


図3 ケルン大学システムで得られた火星東西風⁸⁾。最良で±10 m/s ($\lambda/d\lambda > 10^7$) の精度を達成している。

北大学の中川助教が米・独に長期滞在した。

海外2グループはガスレーザーによる惑星観測システムを一旦完成させている。ケルン大学はいち早くこれを量子カスケードレーザーに換装し(図2)⁷⁾、惑星大気速度場観測等に供してきた(図3)⁸⁾。東北大学では、一時中断させていた開発をJAXAの援助もあって2007年に再開し、ガスセル・地球大気分光スペクトルの取得に至っている(図4)。

電波と比較した場合、赤外域ヘテロダイン分光には以下の困難がある。

(1) 信号光・局部発振光の結合：電波域では、導波管によって両者が比較的確実に結合する。一方、光の結合には高精度の光軸調整が必要で、望遠鏡装着や飛翔体搭載を見越すとその遠隔調整機構も要する。ファイバー導入等で解決できる可能性もあるが、これからの技術である。

(2) サイドバンド除去：電波域では局部発信周波数の上下サイドバンドを分割選択可能としている。この技術を中間赤外域へ「光学的手段」で導入するのは困難で、吸収線がより錯綜する領域にもかかわらず、現時点では両サイドバンドの混合を前提に観測を実施する必要がある。

(3) 広帯域ミキサー：電波域では広帯域確保が実現しているが、赤外域では巨大二次元アレイへ開発主軸が向かい、1990年代には存在した高感度広帯域検出器(～1 GHz)が消えつつある。東北大学で未故障維持する検出器は帯域幅100 MHzにすぎない。入手可能なのは3グループ共同で米Raytheon社に技術維持を依頼する帯域2 GHzのHgCdTe検出器(7～12 μm)が唯一である(今秋導入)。将来手段としては量子井戸型センサー等に可能性があるが、国際的共通課題である。

レーザー分光開発は、われわれが現在進めている地上(ハワイ・マウナケアの光学赤外線望遠鏡、チリ・アタカ

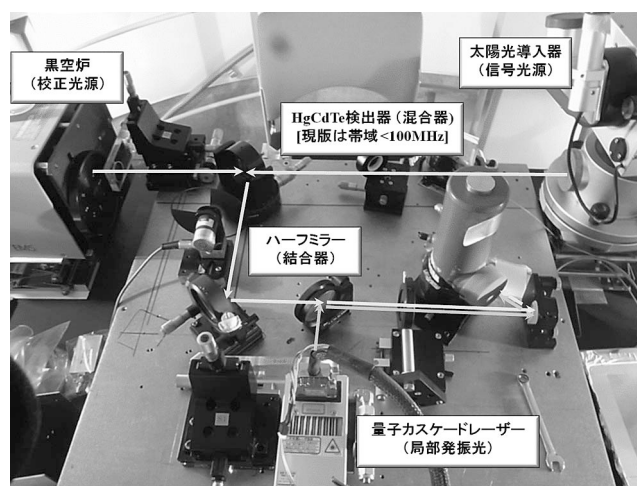


図4 2010年6月現在の東北大赤外レーザーヘテロダイン分光試験システム(O_3 観測用: 9.6 μm 帯)。

マのサブミリ波望遠鏡)および惑星周回機(2010年末から周回予定の金星探査機「あかつき」や欧州火星・金星探査機等)による観測研究を将来展開するためのものである。

東北大学は、ハワイ大学との協力協定を結び、マウイ島ハレアカラ山頂(高度3055 m)に40 cmシュミット鏡を置き、仙台からの遠隔操作で運用している。この「アマチュアクラス望遠鏡へ独自開発の可視高分解能分光器を搭載」という小型大視野高分散システムによって、木星の衛星イオからの火山ガスなど惑星周辺に広がる大気・プラズマの高精度観測でも成果を挙げている。この発展として、ハワイ大学等との国際コンソーシアムによる「惑星・系外惑星専用2メートル級望遠鏡」の構築を2010年度から開始した(<http://www.ifa.hawaii.edu/haleakalanew//planets/>)。開発中の近赤外エシエル分光器および中間赤外ヘテロダイン分光器はこの望遠鏡への展開を目標とする。その先には惑星探査機への搭載がある。

未確立技術には未確立である理由があり、簡単でないのは自明である。困難は伴うが、それは「やることはたくさんある」ということである。胸をはって泥沼を進んでいく予定である。

文 献

- 1) S. Okano *et al.*: Geophys. Res. Lett., **16** (1989) 551.
- 2) I. Murata *et al.*: Adv. Space Res., **24** (1999) 1623.
- 3) K. Ohtani *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys., **41** (2002) L1279.
- 4) C. G. Tarsitano *et al.*: Appl. Opt., **46** (2007) 6923.
- 5) Y. Matsumi *et al.*: private communication (2010).
- 6) T. Kostiuik *et al.*: Appl. Opt., **22** (1983) 2644.
- 7) G. Sonnabend *et al.*: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **109** (2008) 1016.
- 8) G. Sonnabend *et al.*: Geophys. Res. Lett., **33** (2006) L18201.

(2010年7月14日受理)