

## 連続光キャビティ・リングダウン分光法による 二酸化炭素吸収線の圧力広がりの測定

(京大院工\* 国立環境研\*\*)

福田久人\*, 橋本 訓\*, 川崎昌博\*  
森野 勇\*\*, 須藤洋志\*\*, 井上 元\*\*

### 【序】

大気中の分子の濃度を衛星観測などのリモートセンシング観測データ解析に際して、分子のスペクトル線の圧力広がり係数と温度係数 $n$ が必要である。そこで、本研究では連続光(cw)半導体レーザーを用いたキャビティ・リングダウン分光法(CRDS)により二酸化炭素( $3\ 0\ 1$ ) ( $0\ 0\ 0$ )バンドの回転線について、これらのパラメータ求めた。このcw-CRDSは、a)波長分解能が高く、b)小型装置、c)比較的安価である特徴を有する。

### 【実験】

cw-CRDS装置図をFig.1に示す。光源に外部共振器型レーザー(ANDO AQ4321D、1520-1620 nm、線幅 200 kHz、6 mW)を用いた。レーザー光を音響光変調器(AOM)によって屈折した後、高反射率ミラー( $R \geq 0.999$ )を50 cm隔て構成した光学キャビティに導入した。検出側のミラーに円筒型ピエゾ素子を取り付け300Hzでディザリングした。InGaAs検出器(Hamamatsu G5851-11)を用いた。検出側のミラーからの透過光信号強度がある一定のレベルまで到達すると、AOMによって入射光を遮断した。その時点から、キャビティ内に定存していた光はリングダウンを開始し、光信号は指数関数的に減衰する。この減衰速度定数から $\text{CO}_2$ による光吸収量を得る。

### 【結果と考察】

Perturber Gasとして $\text{N}_2, \text{O}_2, \text{He}, \text{Ne}, \text{Ar}, \text{Kr}, \text{Xe}$ を用いた。ガスの混合比はマスフローコントローラによって制御し、測定中は混合ガスを一定流速で流した。測定温度は243~353 Kである。1波長当たり16回以上の積算を行った。

得られた各回転線のスペクトルをVoigt関数でフィットし圧力幅を求めた。その際Doppler幅は測定時の温度に対応する値に固定した。こうして各Perturber Gasについて得られた圧力幅(半値半幅)をPerturber Gasの分圧に対してプロットした例をFig.2に示す。プロットした直線の傾きから、圧力広がり係数 $\gamma/\text{cm}^{-1}\text{atm}^{-1}$ を求めた。

例えば、 $P(0)$ について得られた値は $\gamma(\text{He}) = 0.058 \pm 0.002$ ,  $\gamma(\text{Ne}) = 0.048 \pm 0.002$ ,  $\gamma(\text{Ar}) = 0.062 \pm 0.002$ ,  $\gamma(\text{Kr}) = 0.074 \pm 0.002$ ,  $\gamma(\text{Xe}) = 0.080 \pm 0.004$ ,  $\gamma(\text{N}_2) = 0.078 \pm 0.001$ ,  $\gamma(\text{O}_2) = 0.067 \pm 0.002$ である。

これらと比較するとHeを除いた4つの希ガスの値は分子の大きさに比例して増加している。また、窒素と酸素を比べてみると、どちらも分子の大きさが同程度の二原子分子であるにもかかわらず、窒素の方が酸素よりも大きな値を示している。これは、四重極子モーメントの大きさが異なるためであると考えられる( $\text{N}_2$ : -1.50 D,  $\text{O}_2$ : -0.39 D)。

また、各ガスともに $J$ 値が増加するに従って

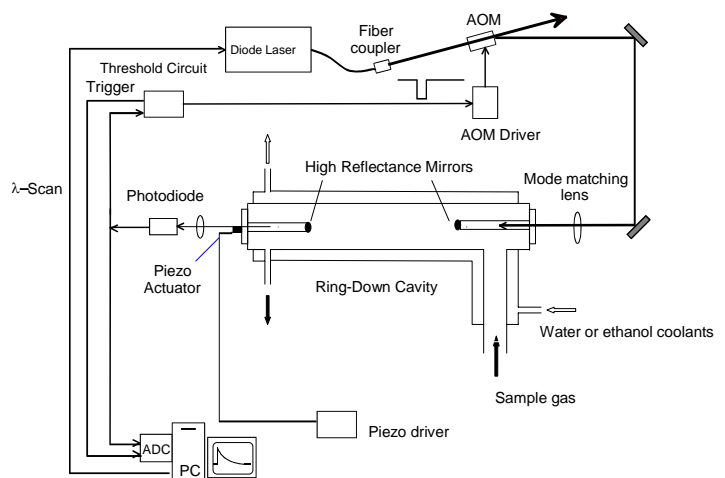


Fig.1 Diagram of CW-CRDS apparatus

値が減少する傾向が見られた。

次に、 $\log(\gamma(T))$ を $\log T$ に対してプロットし、その直線の傾きから  $n$  値と温度に関する式中のパラメータ  $n$  を求めた。

$$\gamma(T)/\gamma(T_0) = (T_0/T)^n$$

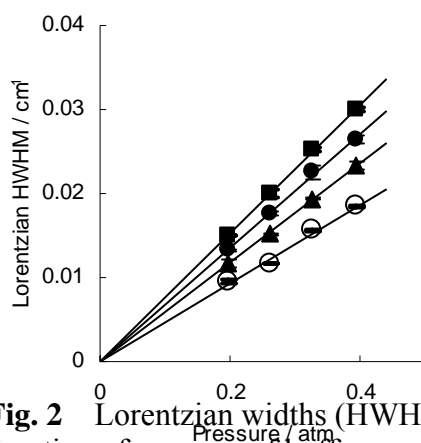
このグラフをFig.2に示す。 $n$ 値は $P(0)$ について、 $n(\text{N}_2) = 0.80 \pm 0.04$ ,  $n(\text{O}_2) = 0.66 \pm 0.08$ ,  $n(\text{Xe}) = 0.82 \pm 0.07$ ,  $n(\text{He}) = 0.30 \pm 0.03$ であった。Heの値が他の気体と比べ小さい。これは、I原子への $n(\text{He})$ 値も0.36と他の気体のと比べ小さかったことと対応している。<sup>(1)</sup>

空気による圧力広がり係数を、窒素および酸素の値から見積もった。

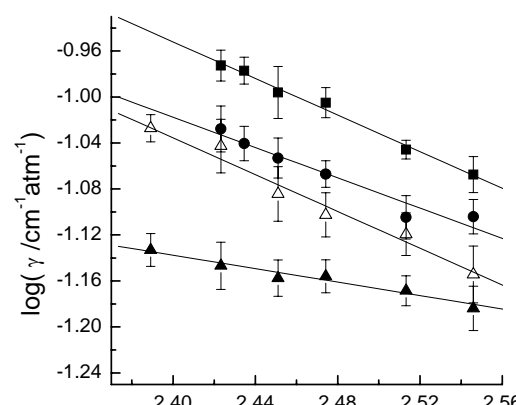
$$\gamma(\text{air}) = 0.79 \gamma(\text{N}_2) + 0.21 \gamma(\text{O}_2)$$

$\gamma(\text{air})$ は、HITRAN data baseの値と比較して今回の結果は4-8%大きい値となった。各温度における  $\gamma(\text{air})$  から、空気の温度係数も求め、その結果をTable1にまとめた。

(1) S. J. Davis *et al.* *J. Phys. Chem. A* 106, (2002), 8323-8327



**Fig. 2** Lorentzian widths (HWHM) for  $P(16)$  as a function of pressure of buffer gases. ■:  $\text{N}_2$ , ●:  $\text{O}_2$ , ▲: He, ○: Ne.



**Fig. 3** Temperature dependence of  $\log(\gamma)$  for  $R(0)$ . ■:  $\text{N}_2$ , ●:  $\text{O}_2$ , △: Xe, ▲: He

**Table 1**  $\gamma(\text{air})$  and  $n(\text{air})$

Transition	$\gamma(\text{air}) / \text{cm}^{-1} \text{atm}^{-1}$		$n(\text{air})$	
	This Work	HITRAN <sup>2)</sup>	This Work	HITRAN <sup>2)</sup>
$R(0)$	0.096(2)	0.0939	0.77	0.74
$P(8)$	0.086(5)	0.0803	0.75	0.71
$P(16)$	0.075(2)	0.0732		
$P(26)$	0.070(4)	0.0687		
$P(38)$	0.069(2)	0.0667		