

II-5 差分吸収レーザーレーダーの測定誤差に関する実験的研究

Experimental Estimation of Errors in Measurement in a Differential Absorption Lidar System

杉本伸夫¹・竹内延夫¹

Nobuo SUGIMOTO¹ and Nobuo TAKEUCHI¹

要 旨

差分吸収レーザーレーダー (DIAL) による大気汚染気体の濃度分布の測定における誤差について実験的な評価を行った。本文では、DIAL 測定における二波長切り替え時間内のエアロゾル濃度分布の変動による誤差について大型レーザーレーダーのデータを用いて考察し、二波長切り替え時間間隔と誤差の関係、データ積算処理方法と誤差の関係について考察する。また、YAG レーザーを用いた DIAL 実験により DIAL 測定の二波長における消散係数の違いから生じる系統的な誤差の評価を行うとともに、DIAL システムの最小検出感度について実験的な評価を行う。

Abstract

Errors in measurement using a differential absorption lidar (DIAL) were experimentally estimated. The error caused by the fluctuation of the aerosol backscattering coefficient was analyzed using the data of the NIES LAMP lidar. The dependence of the error on the time interval of the two wavelength measurements and the dependence on the data accumulation method were investigated. The systematic error due to the difference in the extinction coefficient for the two wavelengths was estimated from a DIAL experiment using a tunable dye laser pumped by a YAG laser. Also, the minimum detectivity of the DIAL system was estimated.

1 はじめに

本特別研究では NO₂ の濃度分布測定を目的とした差分吸収レーザーレーダー (Differential

1. 国立公害研究所 大気環境部 〒305 茨城県筑波郡谷田部町小野川16番2
Atmospheric Environment Division, the National Institute for Environmental Studies, Yatabe-machi,
Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

Absorption Lidar ; DIAL) の開発に関する研究を行ってきた。初年度では、それまで経常研究で行ってきた基礎研究に引き続き、フラッシュランプ励起色素レーザーを用いた DIAL 装置の製作を行った¹⁾。この装置を用いて排煙流中の NO₂ の濃度分布の測定を行い、装置の性能評価を行った。この結果高濃度の領域では NO₂ の濃度分布の DIAL による測定が可能であることが示された。しかしながら、フラッシュランプ励起色素レーザーを用いたシステムでは、レーザーの繰り返し数が遅い (0.5 Hz) ためレーザー波長切り替えの時間内のエアロゾルの変動による雑音の問題になることが明らかになった。この結果については、昭和 55 年度特別研究報告書²⁾でも報告した。また、フラッシュランプ励起色素レーザーは出力が不安定で、また電氣的雑音が大きいため、これを用いてフィールド観測用 DIAL システムを製作することは困難であった。

以上に述べた問題点を解決するために次の二つの方法で研究を進めた。一つは、フラッシュランプ励起色素レーザーを改良し、これを用いて DIAL システムを製作することである。もう一つは、フラッシュランプ励起色素レーザーに比べて信頼性が高く繰り返し数の比較的速い YAG レーザー励起色素レーザーを用いることである。

フラッシュランプ励起色素レーザーについては、信州大学工学部との共同研究により、電氣的な雑音の低減を図るとともに、二波長同時発振できるように改良し、これを用いて DIAL の実験を行った。この研究については本報告書の報文 II-6 で報告されている。

一方、YAG レーザー励起色素レーザーは、フラッシュランプ励起色素レーザーに比べて、出力が安定であること、繰り返し数が速いこと、波長幅が狭いこと、電氣的雑音が少ないこと、信頼性が高いことなどの利点を持っている。本特別研究では昭和 56 年度に YAG レーザー励起色素レーザーを導入し、これを用いた基礎的な研究を行ってきた。昭和 57 年度特別研究報告書³⁾では、YAG レーザー励起色素レーザーを用いた NO₂ の分光学的研究について報告した。

本論文では YAG レーザー励起色素レーザーを用いた DIAL システムにおける、測定誤差に関する実験的な研究について報告する。DIAL 測定における誤差の原因となるものとして、光電子増倍管のショットノイズ、電氣的雑音、A/D 変換の量子化誤差のほかに、二波長切り替え時間内のエアロゾルの濃度変動が重要である。また、二波長におけるエアロゾルの消散係数の違いも系統的な誤差の原因となる可能性がある。

本論文第 2~4 節ではエアロゾルの性質に起因する誤差に着目して実験的な考察を行う。第 2 節では二波長切り替え時間内のエアロゾルの濃度変動と DIAL の測定誤差との関係について考察する。第 3 節ではデータの積算処理の方法と測定誤差の関係について考察する。第 4 節では二波長におけるエアロゾルの消散係数の違いによる系統的な誤差について考察する。

本論文第 5 節では YAG レーザー励起色素レーザーを用いた DIAL システムの予備実験の結果を用いて測定誤差を評価する。これにより、DIAL システムの最小検出感度の評価を行う。第 6 節では本文のまとめと今後の研究について述べる。

2 エアロゾルの濃度分布の変動に起因する誤差

本節では国立公害研究所大型レーザーレーダー⁴⁾のデータを用いて、エアロゾルの濃度分布の変動に起因する誤差の評価を行う。ここでは、大型レーザーレーダーを用いて、毎秒12.5ショットのレーザーレーダー信号を測定し、それぞれのショットをDIAL測定用の λ_{on} (NO₂の吸収のピークの波長)、 λ_{off} (吸収の小さい波長)の信号であると見なして、DIALの場合と同様の濃度の計算を行い、その標準偏差を求める。この場合、実際には同じ波長のレーザーレーダー信号を用いるので、濃度については得られた値は零になるが、誤差については評価が可能である。DIAL測定における波長切り替え時間間隔と測定誤差の関係を調べるため12.5 Hzのデータを n 個おきに取り、 λ_{on} 、 λ_{off} の信号であると見なした。

大型レーザーレーダーのデータを用いた実験結果について述べる前に、まずDIAL測定の誤差について理論的な考察を行う。

レーザーレーダー受信信号は次式で表される。

$$P(R) = cP_0\beta/R^2 \exp[-2 \int_0^R [N\sigma + a] dr] \quad (1)$$

ここに R は距離、 c は装置定数、 P_0 はレーザー出力強度、 β はエアロゾル体積後方散乱係数、 N はNO₂の濃度、 σ はNO₂の吸収断面積、 a はエアロゾルによる消散係数である。ここで次式により $f_i(R)$ 、 $F(R)$ を定義する。

$$f_i(R) = P_i(R+L)/P_i(R) \quad (2)$$

$$F(R) = f_{\text{off}}(R)/f_{\text{on}}(R) \quad (3)$$

ここに i はon、offの波長を意味する。また L はDIAL測定の距離分解能である。これを用いると、NO₂の濃度は次のように書ける¹⁾。

$$N(R) = \frac{1}{2\sigma_a L} \ln [F(R)] \quad (4)$$

ここに、 $\sigma_a = \sigma_{\text{on}} - \sigma_{\text{off}}$ とする。いま、 P_i の平均値からのずれ ΔP_i が平均値 P_i に比べ小さい場合を考えると、濃度 $N(R)$ の偏差は次式のように表される。

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta N(R)}{N(R)}\right)^2 &= \left(\frac{1}{2\sigma_a L N(R)}\right)^2 \left(\frac{\Delta F(R)}{F(R)}\right)^2 \\ &= \text{const} \left[\left(\frac{\Delta f_{\text{on}}}{f_{\text{on}}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta f_{\text{off}}}{f_{\text{off}}}\right)^2 - 2 \left(\frac{\Delta f_{\text{on}}}{f_{\text{on}}}\right) \left(\frac{\Delta f_{\text{off}}}{f_{\text{off}}}\right) \right] \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned}
 &= \text{const} \left[\left(\frac{\Delta P_{\text{on}}(R+L)}{P_{\text{on}}(R+L)} \right)^2 + \left(\frac{\Delta P_{\text{on}}(R)}{P_{\text{on}}(R)} \right)^2 + \left(\frac{\Delta P_{\text{off}}(R+L)}{P_{\text{off}}(R)} \right)^2 + \left(\frac{\Delta P_{\text{off}}(R)}{P_{\text{off}}(R)} \right)^2 \right. \\
 &\quad - 2 \left(\frac{\Delta P_{\text{on}}(R+L)}{P_{\text{on}}(R+L)} \right) \left(\frac{\Delta P_{\text{on}}(R)}{P_{\text{on}}(R)} \right) - 2 \left(\frac{\Delta P_{\text{off}}(R+L)}{P_{\text{off}}(R+L)} \right) \left(\frac{\Delta P_{\text{off}}(R)}{P_{\text{off}}(R)} \right) \\
 &\quad \left. - 2 \left(\frac{\Delta P_{\text{on}}(R+L)}{P_{\text{on}}(R+L)} - \frac{\Delta P_{\text{on}}(R)}{P_{\text{on}}(R)} \right) \left(\frac{\Delta P_{\text{off}}(R+L)}{P_{\text{off}}(R+L)} - \frac{\Delta P_{\text{off}}(R)}{P_{\text{off}}(R)} \right) \right]
 \end{aligned}$$

ここで、最後の等式の右辺の後ろの三つの項は相関項である。これらは負の係数を持つので $P_{\text{on}}(R)$, $P_{\text{off}}(R)$, $P_{\text{on}}(R+L)$, $P_{\text{off}}(R+L)$ の測定値に相関がある場合には N の誤差はある程度打ち消されることがわかる。

$P_i(R)$ の誤差の原因として考えられるのは、光電子増倍管のショットノイズ、レーザー出力強度の変動、エアロゾル体積後方散乱係数 β の変動などである。(エアロゾルの消散係数の項はオーダーが一つ低いので無視できる。) これらのうちショットノイズは $P_{\text{on}}(R)$, $P_{\text{off}}(R)$, $P_{\text{on}}(R+L)$, $P_{\text{off}}(R+L)$ の測定で独立であると考えられる。あとの二つの雑音はそれぞれ相関を持っている。例えば、レーザー出力強度の変動については $P_i(R)$, $P_i(R+L)$ で完全な相関を持っている。また、エアロゾル体積後方散乱係数 β の変動については、二波長の測定が十分短い時間に行われた場合には相関を持つ。また、距離方向についても相関を持っている。

次に、大型レーザーレーダーのデータを用いて、(5)式により $\overline{(\Delta F/F)^2}$ を実験的に評価した結果を示す。ここに、 $\overline{\quad}$ は時系列データの平均値を表す。データとしてはレーザー波長 532nm、繰り返し数 12.5pps で約 10000 ショットの連続したデータを用いた。トランジェントレコーダーのゲート時間は 50 nsec とした。図 1 は二波長測定の間隔に対して $\overline{(\Delta F/F)^2}$ をプロットしたものである。ここでは、 $R=1.5\text{km}$, $L=500\text{m}$ としている ($L=500\text{m}$ では、エアロゾル分布の距離方向の相関は小さいと考えられる)。図には観測の日時が異なるいくつかのデータが示されている。二波長測定の間隔が短くなるとともに誤差は減少して一定値に近づいている。逆に時間間隔が大きくなった場合は誤差は増大し、やはり一定値に近づく。これは次のように解釈できる。時間間隔が大きい極限では二波長の測定においてエアロゾルの変動に相関が無く、時間間隔が小さくなるに従って相関が出てくるために誤差が小さくなると考えられる。図 1 の右端に点線で示したのは、それぞれのデータについて $2(\Delta f_{\text{off}}/f_{\text{off}})^2$ を計算したもので、エアロゾル時間変動の相関が全く無い場合この値に近づくと考えられる。一方、時間間隔が小さい極限では、エアロゾル時間変動が無視できるようになり、一定値に近づく。この実験では、1/12.5 秒以下の時間間隔で測定していないが、図 1 を見る限りでは 1/10 秒程度でほぼ一定に近づいているものと推測される。時間間隔の小さい極限で残っている誤差は相関の無い独立な誤差で、ショットノイズ、電気

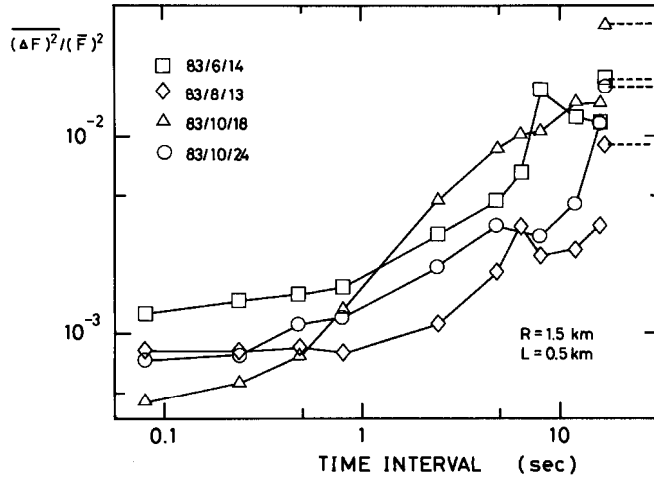


図 1 二波長切り替え時間間隔と誤差 $(\Delta F / \bar{F})^2$ の関係

Fig. 1 Dependence of the error $(\Delta F / \bar{F})^2$ on the time interval of the two-wavelength measurements

的な雑音などの寄与を表していると考えられる。

図 1 の結果はエアロゾル変動の時間相関を表しているが、ここで、 $f_i(R)$ の自己相関係数の計算結果を示しておく。次式により、自己相関係数を計算した。

$$S(j) = \frac{1}{N-j} \sum_{i=j+1}^N (f_i(R) - \overline{f(R)})(f_{i-j}(R) - \overline{f(R)}) \quad (6)$$

ここに i は時系列データの番号、 i が time lag に相当する。また、ここに、

$$\overline{f(R)} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f_i(R) \quad (7)$$

である。 $S(j)$ の計算結果を図 2 に示す。図 2 はちょうど図 1 を逆にした形で、表現は異なるが図 1 と等価である。図 1 あるいは図 2 の結果より、DIAL 測定の波長切り替え時間間隔を 1/10 秒程度以下に選べばエアロゾル変動の影響を十分に打ち消すことができるという結論が得られる。

DIAL の誤差に関するこれまでの研究で、例えば Menyuk-Killinger⁵⁾ は数 km 離れたターゲットからの反射を測定する実験を行い、大気の屈折率のゆらぎが重要であることを指摘している。Menyuk-Killinger はゆらぎの時間スケールとして数ミリ秒を報告している。しかしながら、本研究ではエアロゾルの後方散乱を観測しているので観測されたゆらぎの主な原因はエアロゾルの体積後方散乱係数の変動である。また、本研究の場合、屈折率のゆらぎの影響を受ける可能性のあ

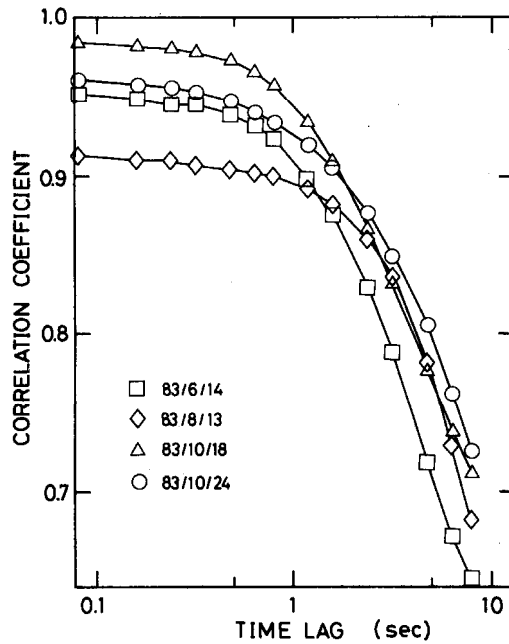


図 2 エアロゾル濃度分布の時間変動の自己相関係数

Fig. 2 Self correlation coefficient of the ratio of the received signals, $f = P(R+L)/P(R)$

る区間は長さ L で, Menyuk-Killinger の実験の場合の数 km に比べて短い。このため屈折率のゆらぎの影響は小さいであろうと推定される。図 1 あるいは図 2 の時間間隔の最小値よりも左側で大気の屈折率のゆらぎの寄与が残っている可能性はあるがその寄与はエアロゾルの体積後方散乱係数の変動に比べて小さいことは明らかであろう。

これまでに、いくつかの研究機関で開発された DIAL システムのうち, NASA や SRI のシステムは 2 台のレーザーを使用し, 0.1 ミリ秒の時間内に二波長の測定を行う方式を採用している。これに対してスウェーデンの Fredrikson らによる DIAL システムでは 1 台のレーザーを 1/10 秒ごとに波長を切り替えて測定を行っている^{6,7)}。本研究の結果から 1/10 秒ごとに波長を切り替える方式でも, エアロゾル変動の影響をほとんど受けないことが結論される。ただし, 排煙中など高濃度のエアロゾルが小さな空間スケールに分布している場合の測定では, もっと速い時間変動が問題になることが予想される。また, 当然ながら NASA の場合のように航空機搭載型の場合は速い波長切り替えが必要であろう。

エアロゾルの濃度分布の時間変動は, エアロゾルの濃度の空間分布と風速により決まると考えられる。したがって, エアロゾルの濃度の空間分布スケールを調べることはより本質的な問題として重要であろう。これは, 今後の課題であるが, ここで, エアロゾルの空間分布スケールについて簡単な考察を行っておく。図 3 に本研究で用いたデータのうちの二つについて一次元エアロ

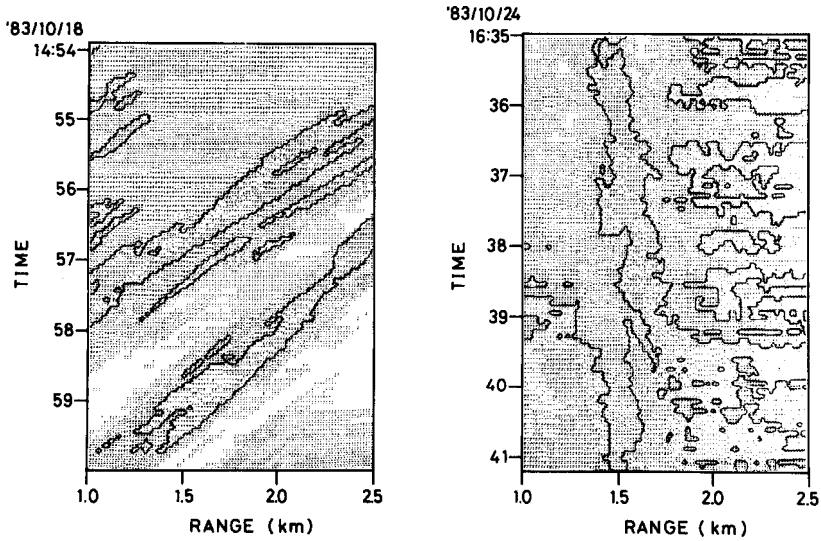


図 3 エアロゾル一次元濃度分布の時間変化の例

Fig. 3 Temporal profile of the aerosol concentration

Deviation from the mean value of aerosol concentration at each distance is shown.

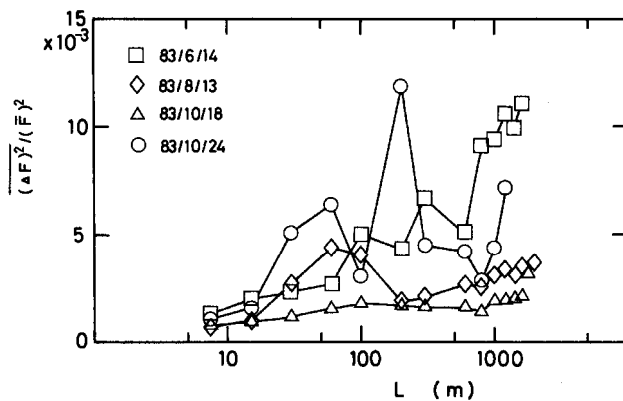


図 4 距離分解能 L と誤差 $(\Delta F/F)^2$ の関係

Fig. 4 Dependence of the error $(\Delta F/F)^2$ on the range resolution L

ゾル濃度分布の時間変化のパターンを表示した。この図は各距離におけるエアロゾル濃度の時間平均値からのずれを 10 段階で表示したものである。レベル 5 が平均値に相当している。この図より、代表的なエアロゾル空間分布スケールは、数十から数百 m であることがわかる。この分布スケールは、風速が数 m であることを考えると、時間相関が 10 秒以下で大きくなることとよく対応している。また、図より、測定時の風向により一次元濃度分布の変化の様子が異なることが見ら

れる。

ところで、図1の計算では DIAL 測定の距離分布解能 L として大きな値 500 m の場合を考えしたが、 L を小さくした場合、エアロゾルの空間方向の相関が大きくなるために誤差が減少することが考えられる。本節の最後に、 $\overline{(\Delta F/\bar{F})^2}$ の L に対する依存性を図4に示す。 $R=1.5\text{km}$ とした。また、時間間隔は大きな値 80 秒とした。データのサンプル数が少ないので多少バラついてはいるが、 L が小さくなるに従って誤差が減少する傾向が見られる。しかしながら、実際の DIAL 測定では L は数十から数百 m に取るので、空間方向の相関による誤差の減少はあまり期待できない。また、測定時間間隔が十分に小さい場合にはエアロゾル分布の変動は既に完全に打ち消されているので、空間方向に相関があっても誤差がさらに減少することはない。

以上、本節ではエアロゾル濃度分布の変動による DIAL の測定誤差について考察を行った。次節では、データの積算処理の方法と測定誤差の関係について述べる。

3 データ積算処理の方法と測定誤差について

実際の DIAL 測定においては、信号対雑音比(SN 比)を改善するためにデータの積算処理を行うことが一般的である。また、データ処理装置の機能から考えても、1ショットごとのレーザーレーダー信号を記録することは膨大な記憶容量を要するので現実的ではない。本節では、どのようなデータの積算処理を行う場合にも最も SN 比の良い結果が得られるかを考察する。

ここでは、次の3種類の処理方法について考える。

(方法1) λ_{on} , λ_{off} を交互に測定し、得られた信号 $P(R)$ を1ペアごとに演算して $N(R)$ を求め、 $N(R)$ について M 回の積算を行う。

(方法2) λ_{on} , λ_{off} を交互に測定し、 $P_i(R)$ について M 回の積算を行う。積算された $P_{\text{on}}(R)$, $P_{\text{off}}(R)$ を用いて濃度を計算する。

(方法3) λ_{on} を M 回続けて測定して積算を行い $P_{\text{on}}(R)$ を求め、次に λ_{off} を M 回続けて積算を行い $P_{\text{off}}(R)$ を求める。これらを用いて濃度を計算する。

方法1はレーザー出力の変動、エアロゾル分布の変動を完全に打ち消すことができるので、 ΔP_i が P_i に比べて十分小さい限りは理想的な方法である。しかし、演算が多く必要で高速の計算機が必要である。また、 ΔP_i が P_i と同じ程度に大きくなると、割算の過程で誤差が非常に拡大されるのでこの方法を使うことはできなくなる。

方法2はレーザー出力の変動が大きい場合、エアロゾル分布の変動を完全に打ち消すことができなくなる可能性がある。しかし演算は少なくすむので現実的な方法である。また、割算の前に雑音が改善されるので ΔP_i が大きい場合にこの方法は有効である。

方法3は、積算回数を増やした場合エアロゾルの時間変動の影響を直接に受けるので誤差が増えて大きくなることも考えられる。

前節と同じデータを用いて、以上の三つの場合について実際に M 回積算したときの $\overline{(\Delta F/\bar{F})^2}$

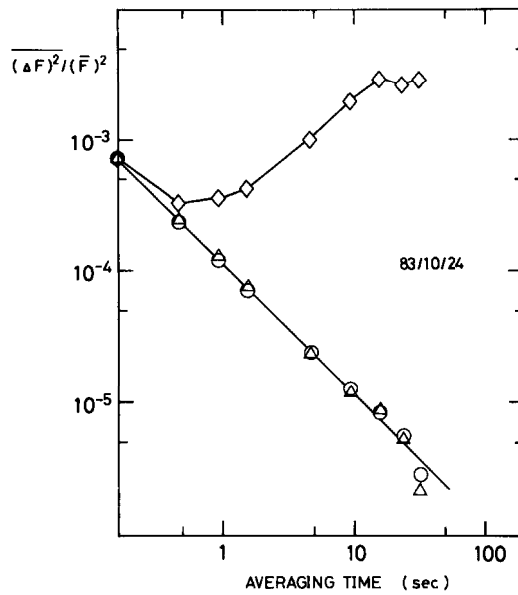


図 5 データ積算時間と誤差 $(\Delta F/\bar{F})^2$ の関係
丸印：(方法 1)，三角：(方法 2)，菱形：(方法 3)。

Fig. 5 Dependence of the error $(\Delta F/\bar{F})^2$ on the averaging time. Three methods for data averaging are shown with circles, triangles and rumbusis.

を計算した結果を図 5 に示す。ここでも、 $R=1.5\text{km}$ 、 $L=500\text{m}$ とした。方法 1, 2 では積算回数に比例して、誤差 $(\Delta F/\bar{F})^2$ が減少していることがわかる。これに対して 3 の方法では、積算回数を増やした場合逆に誤差が増加している。これは、積算時間がエアロゾル変動の相関時間を越えたために、エアロゾルの変動が打ち消されなくなったためである。一方、1, 2 の方法で、誤差が正確に $1/M$ に比例していることは、エアロゾルの変動が完全に打消されていて、 $F(R)$ については長い時間の自己相関がないことを示している。

ところで 3 の方法を用いる場合、 $R=1.5\text{km}$ と $R+L=2\text{km}$ の 2 点の回りのある距離範囲 K にわたって距離方向の積算のデータの積算を行うことにより、誤差が改善されるかどうかを調べた結果を図 6 に示した。図 6 を見ると確かに距離方向のデータの積算の効果は見られるが、エアロゾル変動による誤差を距離方向の積算だけでは十分に改善することはできないことが結論される。このことは、図 3 に示したエアロゾル濃度分布のスケールから考えても納得のいく結果であろう。

本節の考察により、データ積算の方法としては (方法 2) が最も現実的で適当であること、またこの方法でデータの積算による SN 比の改善が理論どおりに期待できることが結論される。

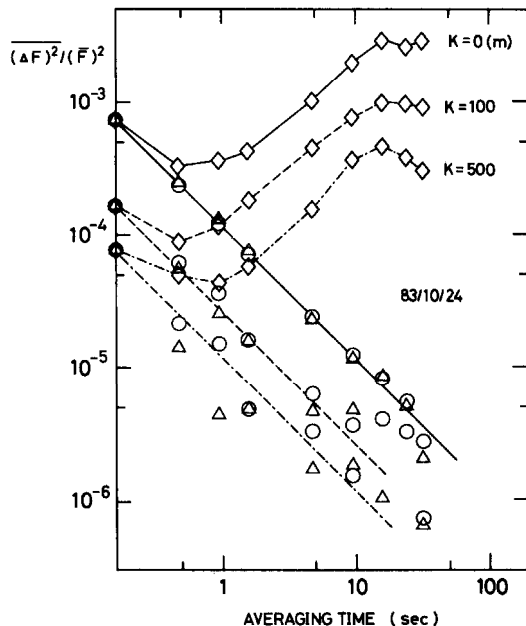


図 6 データ積算時間と誤差 $(\Delta F/F)^2$ の関係
距離方向の積算を行った場合 丸印：(方法1), 三角：(方法2), 菱形：(方法3)。

Fig. 6 Dependence of the error $(\Delta F/F)^2$ on the averaging time. Signal at each distance was spatially averaged within the range of $\pm(K/2)$.

4 エアロゾルの消散係数の波長依存性より生じる誤差の評価

前節までの議論では、測定結果の標準偏差という意味での誤差について議論してきた。本節では、DIAL 測定における濃度の算出の際に用いられる仮定から生じる誤差について考察する。DIAL 測定では近接する二波長を用いるので消散係数 α は二波長で等しいと仮定している。しかし、厳密には α は短波長で大きい。本節では実際の DIAL 測定において α の波長依存性からどの程度の(何 ppb に対応する)系統的な誤差を生じるかについて評価する。

ここでは、YAG レーザー励起色素レーザーを用いて NO_2 の吸収断面積の等しい 447.0 nm と 449.5 nm の二波長でレーザーレーダー信号を測定し、2 波長の信号の減衰係数の差から α の波長依存性を評価した。使用した装置については次節の表 1 に示す。ここでは、10 pps で 100 ショットごとに二波長を切り替えて約 15 分間の積算を行った。(1)式より、二波長のレーザーレーダー信号の比は、

$$\frac{P_1(R)}{P_2(R)} = \frac{P_{01}\beta_1 \exp[2(-N\sigma_1R - \alpha_1R)]}{P_{02}\beta_2 \exp[2(-N\sigma_2R - \alpha_2R)]} \quad (8)$$

ここで簡単のために α は距離によらず一様と仮定した。今、減衰は小さいとして指数関数を展開して一次まで取ることにする。 $\sigma_1 = \sigma_2$ の二波長を選んでいるので、

$$\frac{P_1(R)}{P_2(R)} = \frac{P_{01}\beta_1}{P_{02}\beta_2} [1 - 2(\alpha_1 - \alpha_2)R] \quad (9)$$

図7に $P_1(R)/P_2(R)$ を、 $R=0$ において1になるように規格化してプロットした。ここに1は447.0 nm, 2は449.5 nmを意味する。この直線の傾きから $2(\alpha_1 - \alpha_2)$ を求めると、0.016(/km) が得られる。

次に、この値が実際の DIAL 測定でどの程度の誤差をもたらすかを評価する。DIAL 測定で $\lambda_{on} = 447.9\text{nm}$, $\lambda_{off} = 446.6\text{nm}$ の二波長を用いることにする。波長差は1.3 nmである。今、 α の波長依存性についても一次で展開することになるとこの波長ペアについて $2(\alpha_{on} - \alpha_{off})$ は次式で求められる。

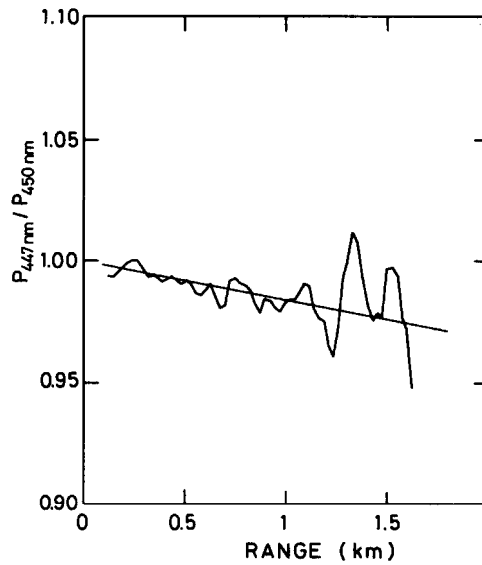


図 7 二波長のレーザーレーダー信号の比

Fig. 7 Ratio of the laser radar signals at 447 nm and 450 nm

$$2(\alpha_{\text{on}} - \alpha_{\text{off}}) = 0.016 \times (-13) / 25 = -0.009 (/ \text{km}) \quad (10)$$

一方、1 ppb の NO₂ による吸収係数の差は $\sigma(447.9\text{nm}) = 7.17 \times 10^{-23} \text{m}^2$, $\sigma(446.5\text{nm}) = 3.59 \times 10^{-23} \text{m}^2$ を用いると

$$2(\sigma_{\text{on}} - \sigma_{\text{off}})N = 0.00192 (/ \text{km}) \quad (11)$$

となる。したがって、 α の依存性から約 -4.7ppb に相当する系統的な誤差が生じることになる。

消散係数にはエアロゾルのミー散乱と空気分子のレイリー散乱が寄与している。地上付近では、エアロゾルの寄与が主であり、今の場合にもレイリー散乱の寄与はたかだか数%であると見積もられる。波長に対する依存性はレイリー散乱では λ^{-4} で、ミー散乱に比べて波長依存性は大きい。そのことを考慮してもレイリー散乱の寄与は無視できる。

エアロゾルの消散係数の波長依存性については次の経験式が知られている⁶⁾。

$$\alpha = \frac{3.91}{V} \left(\frac{\lambda}{0.55} \right)^{-q} \quad (12)$$

ここに V は視程である。また、

$$q = 1.3 \quad \text{平均的規程の場合}$$

$$q = 0.585 V^{1/3} \quad V < 6\text{km のとき}$$

この式を用いて $2(\alpha_{\text{on}} - \alpha_{\text{off}})$ を計算すると、 $V = 10\text{km}$ のとき $-0.0039 (/ \text{km})$, $V = 5\text{ km}$ のとき $-0.0056 (/ \text{km})$, $V = 2\text{ km}$ のとき $-0.0099 (/ \text{km})$ となる。今回実験的に得られた $2(\alpha_{\text{on}} - \alpha_{\text{off}}) = -0.009 (/ \text{km})$ の誤差はこれと比較して多少大きめであるが、妥当な値であると考えられる。(もしも、レーザーレーダーデータから α の値の絶対値が評価できれば、(12)式の経験式そのものの検討を行うことができる。今回の測定データでは、装置の視野の重なり関数 $Y(R)$ が不明確なことから、データを記録した距離範囲が狭いため α の絶対値を正確に決めることが困難であった。このため、ここでこれ以上の議論は行わない。しかし、今後広い波長にわたって α の波長依存性を調べることは重要な課題の一つであると考えられる。)

ところで、-4.7ppb の系統的誤差は環境濃度の測定では無視できない。したがって何らかの補正が必要である。補正の方法としては次の方法が考えられる。エアロゾルの分布が一様であると見なせる場合には、視程に対応する補正値を計算して測定値に加えることにより補正することができる。また、エアロゾル分布が一様と見なせない場合には、例えば吸収のピークを挟んで三波長(すなわち二つのペア)で測定を行い、二つのペアから求めた濃度の値を波長の重みを付けて平均する方法で補正することができる。

5 YAG レーザー励起色素レーザーを用いた DIAL の誤差の実験的評価

本節では、YAG レーザー励起色素レーザーを用いた DIAL の誤差の予備的な実験による評価の結果について報告し、現時点でどの程度の感度で DIAL 測定が可能であることを示す。使用した装置の主な仕様を表 1 に示す。ここでは、色素レーザーの波長を 447.0 nm に固定して、10 pps でレーザーレーダー信号を連続して測定した。測定は 6 月の夕方(7 時前後)に行った。トランジェントレコーダーのゲート時間は 20 ns に設定した。このデータを用いて第 2 節, 第 3 節で行ったのと同様の方法で誤差の評価を行った。

表 1 予備実験に用いた装置の主な仕様
Table 1 Specifications of the DIAL system used for the error estimation

Lasers	YAG laser pumped dye laser (Quanta-Ray PDLI) Pulse energy 10 mJ Pulse duration 6 nsec Repetition 10 pps Spectral width 0.3 cm ⁻¹
Telescope	0.5 m Newtonian
Photomultiplier	RCA 8852
Transient recorder	Iwatsu DM901 Accuracy 8 bits Clock rate 10 nsec Memory 1024 words
Computer	NOVA4/C

図 8 に第 3 節の 2 番目の方法により十分間の積算を行った場合の $(\overline{\Delta F(R)}/\overline{F(R)})^2$ と、これに対応する濃度の測定値の誤差を示す。距離分解能 $L=200\text{m}$ としている。 $F(R)$ の計算においては距離分解能に見合うだけの距離方向の平滑化処理を行っている。図 8 は約 700 m までの距離で 10 ppb の NO₂ が SN 比 1 で測定できることを示している。しかしながら、この値は同じレーザーと望遠鏡を用いた最適システムに対して理論より予測される測定感度に比べるとまだひとけた程度高い。最適システムの理論計算の結果は以前の論文(3)に示した。次に、この誤差の原因について考察する。

$(\overline{\Delta F}/\overline{F})^2$ は次のように表されることが考えられる。

$$\left(\frac{\overline{\Delta F}}{\overline{F}}\right)^2 = C_0 + \frac{C_2}{P} + \frac{C_4}{P^2} + g(R) \quad (13)$$

ここに第 1 項はエアロゾル後方散乱係数の変動による誤差を表す。また、第 2 項はレーザーレー

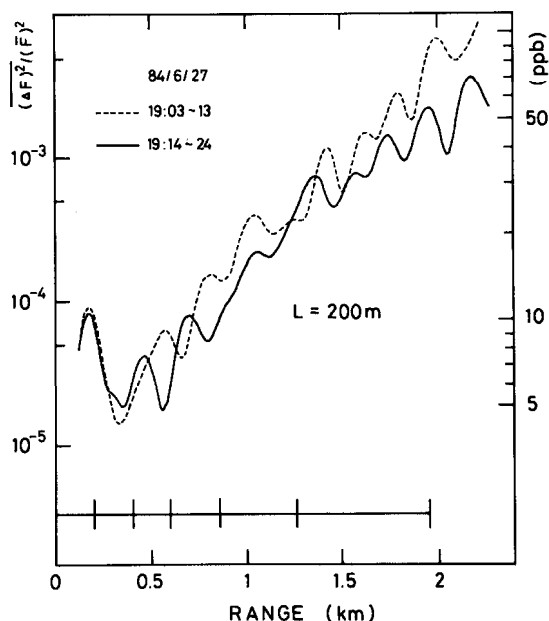


図 8 DIAL 測定における誤差 $(\Delta F/\bar{F})^2$ と対応する濃度。

Fig. 8 Experimentally estimated errors in DIAL measurements

ダー信号によるショットノイズ, 第3項は背景光によるショットノイズ, A/D変換の量子化誤差, レーザーレーダー信号と同期していない電氣的雑音などを表す。また, 最後の項はレーザーレーダー信号と同期した電氣的雑音を表す。図9は実験結果を用いて $(\Delta F/\bar{F})^2$ を P の測定値に対してプロットしたものである。図9を見ると P^{-2} に比例する項が主であることがわかる。これは, 実験状況から考えて, 背景光によるショットノイズが主な原因となっているものと考えられる。理想的なシステムにおいては, $(\Delta F/\bar{F})^2$ は 3 km 付近まで信号のショットノイズで制限され, P^{-1} の依存性を持つはずである。 $(\Delta F/\bar{F})^2$ が P^{-1} の依存性を持たないということは, まだ雑音の改善の余地があることを意味している。

ところで, 今回の予備実験の結果でも, 10分間の測定で, 500 m の距離において, 距離分解能 200 m で, 約 8 ppb の NO_2 が SN 比 1 で測定できることが示された。これは都市域において高濃度の気団をとらえることが可能な性能である。 $(\Delta F/\bar{F})^2$ は L の 3 乗に比例するので遠方になるほど距離分解能を粗く, すなわち L を大きくとることにより, どの距離においても同程度の感度で測定を行うことができる。図8中に, 今回の実験結果を用いて, 8 ppb の感度が得られる距離分解能を表示した。今後さらに実際の DIAL システムに即して, 雑音の検討を行い, 誤差の低減を図ることが必要である。

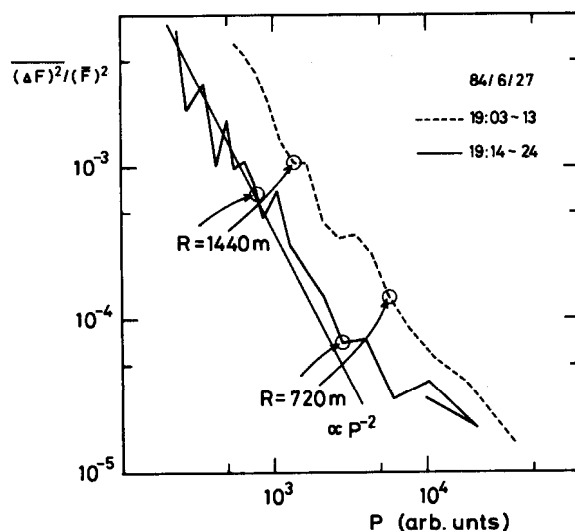


図 9 誤差 $(\Delta F/F)^2$ の P に対する依存性

Fig. 9 Dependence of the error $(\Delta F/F)^2$ on the received signal intensity P

6 おわりに

以上、本文では、DIAL 測定における誤差について実験的な考察を行った。本研究により次の結論が得られた。

- 1) DIAL 測定において、二波長切り替え時間内のエアロゾル濃度の変動は誤差の原因の一つとして重要である。
- 2) エアロゾル濃度の変動による誤差は二波長切り替え時間間隔を小さくすれば打ち消される。本研究の結果では、1/10 秒以内に二波長の測定を行えば十分である。
- 3) 二波長の受信信号の比を取ったデータについては、長い時間スケールの自己相関は見られず、データの積算により理論通りに誤差が低減する。
- 4) エアロゾルの消散係数の波長依存性から DIAL 測定で得られた濃度に対して数 ppb の系統的な誤差を生じる可能性があり、補正を行う必要がある。
- 5) DIAL により、10 ppb レベルの NO_2 の測定が可能である。

DIAL の大気汚染研究への応用としては例えば、煙突や道路などの発生源からの汚染物質の拡散の追跡などが考えられる。 NO_x については NO から NO_2 への変化の追跡なども興味あるテーマである。しかしながら、応用研究においては DIAL の性能、すなわち最小検出感度、距離分解能、時間分解能(測定に要する時間)を十分に考慮して研究の対象を設定することが必要である。DIAL では、高距離分解能、高時間分解能を要する測定は難しいので、例えば一本の煙突の排煙の拡散を追跡する研究などへの応用はあまり適当ではないと考えられる。

これに対して、DIALによるNO₂濃度の鉛直分布の連続観測と、他の方法による風向風速の測定を組み合わせ、比較的広い領域の汚染気団の移流の観測は、DIALシステムの性能から考えても成果が期待できる。システムの形態としては、簡易型レーザーレーダーによる混合層高度の連続観測⁹⁻¹¹⁾と同じように、フィールドにおいてNO₂濃度の鉛直分布が長時間にわたって連続観測できるDIALシステムが有望である。大気物理研究室では、このような観測を目的としたYAGレーザー励起色素レーザーを用いたDIALシステムの製作を計画している。DIALではエアロゾル分布も同時に測定できるので、このシステムで混合層高度も同時に観測することができる。

ところで、NO₂以外の物質については、YAGレーザー励起色素レーザーを用いた同様のシステムにより、SO₂、O₃、H₂Oの測定が可能である^{6,7)}。

謝 辞

データの解析において御協力をいただいた信州大学工学部情報工学科の南波浩一氏に感謝します。

引 用 文 献

- 1) 杉本伸夫・竹内延夫・奥田典夫 (1982): 差分吸収レーザーレーダーによる排煙流中のNO₂の濃度分布の測定. 応用物理, **50**, 923-928.
- 2) 杉本伸夫・竹内延夫・奥田典夫 (1982): 差分吸収レーザーレーダーによる排煙流中のNO₂濃度分布の測定. 国立公害研究所研究報告, 第34号, 187-198.
- 3) 杉本伸夫 (1984): NO₂の分光特性と遠隔計測への応用上の問題点. 国立公害研究所研究報告, 第49号, 105-122.
- 4) 清水 浩・竹内延夫・笹野泰弘・杉本伸夫・松井一郎・奥田典夫 (1982): 広域大気汚染観測用大型レーザーレーダーの設計と製作. 国立公害研究所研究報告, 第34号, 61-81.
- 5) Menyuk, N. and D. K. Killinger (1983): Assenment of relative error sources in IR DIAL measurement accuracy. Appl. Opt., **22**, 2690-2698.
- 6) 杉本伸夫・竹内延夫 (1982): 大気汚染計測—レーザーセンサーによる遠隔計測—. ぶんせき, **11**, 834-841.
- 7) 杉本伸夫・竹内延夫 (1982): 大気汚染計測用分光型レーザーレーダーの現状. 国立公害研究所研究報告, 第34号, 19-28.
- 8) Kruse, P. W., L. D. McGlanchlm and R. B. McQuistan (1962): Elements of Infrared Technology. Wiley, New York, 189-192.
- 9) 笹野泰弘・松井一郎・清水 浩・竹内延夫 (1983): レーザーレーダーによる混合層高度の連続自動観測. 大気汚染学会誌, **18**(2), 175-183.
- 10) 松井一郎・笹野泰弘・清水 浩・竹内延夫 (1984): 混合層連続測定用簡易型レーザーレーダーの製作. 国立公害研究所研究報告, 第49号, 15-26.
- 11) 笹野泰弘・松井一郎・清水 浩・竹内延夫 (1984): レーザーレーダーによる混合層高度の連続自動観測. 国立公害研究所研究報告, 第49号, 27-38.