レーザー解説 1

レーザーレーダーによる中層大気観測

広野 求和*・藤原 玄夫*・長沢 親生*
内野 修**・前田 三男**

Observation of the Middle Atmosphere with Laser Radars

Motokazu HIRONO*, Motowo FUJIWARA*, Chikao NAGASAWA*,
Osamu UCHINO**, Mitsuo MAEDA**

1. はじめに

レーザーレーダー（ライダー）による大気の研究については数多くの論文があり、すぐれた総合報告^{1),2)}が出されている。これらの論文の大部分は対流圏内の大気汚染・運動などの遠隔探査に関するもので、成層圏・中間圏などを主としたいわゆる中層大気観測は少数ではあるが、各地で進められている。1978年、国際学術連合会議（ICSU）により中層大気国際協同観測（Middle Atmosphere Program略称MAP）を国際協力によって推進することが決定され、我が国も参加することになった。このMAPにはレーザーレーダーの活躍が期待されているので、この領域の研究の現状と展望について述べることにする。実施の時期としては1979—1981がPRE-MAP、1982—1985がMAPとされて目下具体的計画が進められている。

鉛直に打ち上げられたレーザー送信光の各高さからの後方散乱波を受信しておこなわれる成層圏エアロゾル観測には最初ルビーレーザー（波長： $\lambda=694.3\text{nm}$ ）が用いられ、³⁾現在でも賞用され

ている。しかし単位時間あたりの平均出力は1W程度が限度で出力不足のうらみがある。色素レーザー（ $\lambda=465, 598, 605\text{nm}$ など）も用いられ成果があげられているが、あとで述べるように静穏期成層圏エアロゾル観測には波長の長い方が有利であって、短い波長では出力積算の如何にかかわらず精度が劣る。これらについては3（広野）で述べる。色素レーザーのすぐれた波長同調可能性を利用して、589nm単色光の出力を使用する共鳴散乱により、中間圏ナトリウム層等の観測をすることがイギリスを始め各国でおこなわれている。この分野については4（藤原・長沢）で述べる。成層圏微量成分の検出にDifferential Absorption of Scattered Energy（略してDASE²⁾）の技術を応用することが可能で、300nm内外の紫外光を色素レーザーのSHG、またはエキシマーレーザー出力で送信しオゾンの分布を観測でき、この精度が向上すれば晴天時オゾンプロファイルの連続観測可能となる。この分野については5（内野・前田）で述べる。このような強力な紫外レーザーの出現は各種成分のラマン散乱による観測にも

* 九州大学理学部物理学科（〒812 福岡市東区箱崎）

** 九州大学工学部電気工学科（〒812 福岡市東区箱崎）

* Department of Physics, Faculty of Science, Kyushu University (Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812)

** Department of Electrical Engineering, Faculty of Engineering, Kyushu University (Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812)

明るい希望をもたらすであろう。

2. SAGE国際共同観測

2.1 SAGE計画

人工衛星による成層圏エアロゾル、オゾン (O_3)、二酸化窒素 (NO_2) 観測計画がNASAにより推進され、Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (略称SAGE) とよばれる。このためAEM-Bという高さ約600km、軌道傾射角約 55° の円軌道の衛星が1979年2月18日16:18 (GMT) に打ち上げ成功し (Fig. 1), 以後1年間軌道上の日出・日没近く、太陽光が成層圏を略水平に通過する頃に、その4波長0.385, 0.45, 0.6, $1\mu m$ の大気による減衰を視野0.5分 (大気の高さ0.5kmに相当) の光学系とシリコンPIN diode検出器を用いて精密に測定する。

Fig. 1 SAGE viewing geometry. After Russell *et al.*¹³⁾

そのデータをInversion法⁴⁾で処理して成層圏内の O_3 、 NO_2 、エアロゾルの高さ分布を出そうとするもので、これが成功すれば、殆んど全地球上の3成分濃度分布が初めて統一的方法で測定されることになる。高さに対する分解能は1 km程度で今までの方法に比較して非常によくなるが、水平分解能は100 km程度で余りよくない。軌道に沿って地球を一周する間に日出・日没の際計2回観測できるがその他の時間は測定できない。Precessionのため軌道面が毎日約5度宛西向に回転してゆくので観測点の緯度が毎日移動し、約14日毎に特定の地点上空の観測ができることになる。

このようにSAGE観測が間歇的であることを補うため、地上または6000mの上空をとぶ航空機上でレーザーレーダーによるエアロゾル連続観測やバルーンによる3成分観測を同時に推進し、上記Inversion計算値の正当性を検討し、双方相補的に確実に高い信頼性をもったデータを集積しようという世界的SAGE共同観測が開始されている。SAGE衛星の機能は実質的には3年程永続する筈であって、1983-4年にSAGE IIが計画されている。我が国のExos-C衛星も東大宇宙研により1984年に打ち上げられ同様の観測をする予定である。

2.2 観測と研究の目的

オゾンは大気の輻射平衡・熱収支などに極めて重要な役割を演じているが、その濃度のピークは約25kmの高さにあり、対流圏の10倍以上であるが大気の大循環や拡散のために、光化学平衡から予想されるのとは著しくかけ離れた世界分布をしている。 NO_2 や NO などは NO_x として総合的に取り扱われるが、 O_3 破壊の元凶と見なされ、主として成層圏下部に自然および人工的原因で生成される。エアロゾルは主成分は硫酸75%、水25%の液滴または結晶状であり、太陽輻射減少を通じて気候変動の大きな原因であることは歴史的事実であるが、さらにオゾン減少の触媒であるという説がある。また最近Ames Center (NASA)⁵⁾のU2機による捕集サンプル分析による研究結果は、エアロゾル中には上記成分の他に NO_x も相当含有しているということで、もしこれが確立すればエアロゾルは凝縮生成沈降の際多量の NO_x を成層圏から対流圏へ排出するという作用をもつに違いない。つまり NO_x の清掃作用を演じているということになる。さらに HNO_3 と上記3成分はエアロゾル生成論に重要な役割を演じているという説もあり NO_2 の確実な分布を調査しておくことは重要である。

3. 成層圏エアロゾルの観測

3.1 観測方法

Fig. 2 に示されるようにレーザーレーダー送

Fig.2 Schematic diagram of the 1.22-meter NASA langley Research Center lidar system. After Russell *et al.*⁽¹³⁾

信機から鉛直に打ち上げられたパルスの光子数を P_0 とするとき、高さ z と $z + \delta z$ の間の大気から後方散乱されて受信機に入り、打ち上げ後 $t = 2z/c$, $t + \Delta t$ (c は光速) 秒の間に数えられる光子数は

$$P(z) = (P_0 A T^2 \eta / z^2) \delta z \{ \beta_M(z) + \beta_D(z) \} \quad (1)$$

ここに $\delta z = c \Delta t / 2$, A は受信鏡の面積, $T = \exp \left[-\int_0^z \alpha(z) dz \right]$ は大気の透過率, η は受信系総合光子計数効率, α は大気減衰係数, β_M , β_D は z の高さにおける単位体積毎の気体及びエアロゾルによる後方散乱係数である。ここでパルスの時間幅 τ は狭くて $\tau < \Delta t$ が成立するものとする。成層圏エアロゾルの観測に際しては、透過率 T はほとんど対流圏の $\alpha(z)$ の分布によって定まり、(1)式で $z > 10\text{km}$ のときは一定とみてよい。 $K = P_0 A T^2 \eta \delta z$ とおけば

$$P(z) = K \frac{\beta_M + \beta_D}{z^2} \quad (2)$$

とかける。 K は使用するレーザーの波長によって決められるライダーの定数である。大気分子の約30km迄の密度の分布は、気象台で毎日行われているゾンデの観測値を用いて定められ、これにもとづいて β_M の高さ分布を決定する。問題は K の値をよい精度で決定する方法にある。種々の経験事実にもとづいて圏界面付近10~15

kmまたは24~35kmの高さ付近に純レイリー散乱層： $\beta_D = 0$ の存在を仮定すれば、測定値 $P(z)$, $\beta_M(z)$ と(2)式から K を決定できる。これを用いて散乱比 (Scattering Ratio) R は

$$\{ \beta_M(z) + \beta_D(z) \} / \beta_M(z) = R(z) \quad (3)$$

これから

$$\beta_D(z) = \beta_M(z) \{ R(z) - 1 \} \quad (4)$$

を計算できる。上記の仮定はバルーンによる直接観測との比較により多くの場合成立することが知られている。この方法は「(i) $R_0 = 1$ 基準面仮定法」とよぶことにする。

3.2 測定誤差の問題点

P , β_M , β_D , K などの平均誤差をそれぞれ ϵ_P , ϵ_M , ϵ_D , ϵ_K とすれば(2), (4)式から各誤差が独立であるとするとき次の式が得られる。

$$\frac{\epsilon_D}{\beta_D} = \left\{ \frac{1}{(R-1)^2} \left\{ \left(\frac{\epsilon_M}{\beta_M} \right)^2 + \frac{R^2}{R_0^2} \left(\frac{\epsilon_{M_0}}{\beta_{M_0}} \right)^2 + R^2 \left(\frac{\epsilon_P}{P} \right)^2 + R^2 \left(\frac{\epsilon_{P_0}}{P} \right)^2 \right\} + \left(\frac{R}{R_0} \right)^2 \left(\frac{R_0 - 1}{R - 1} \right)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (5)$$

添字 0 は基準面における実際の値を示している。 β_D , β_M はそれぞれミー、レイリーの散乱であるから λ^{-1} と λ^{-4} に比例する。(4)式から

$$(R-1) = \beta_D / \beta_M \propto \lambda^3 \quad (6)$$

の関係があり、ゾンデの測定誤差に由来する $\epsilon_{M_0} / \beta_{M_0} \sim \epsilon_M / \beta_M \sim 1\%$ がさがたいと言われている。

(i) $R_0 = 1$ の場合にはレーザーの波長が大きい程相対誤差は小さくなる。火山活動静穏期には、ルビー波長でエアロゾル層ピーク付近において $(R-1)_{\lambda r} \leq 0.1$ となり、ルビーとYAG (基本波, Fと記す) 波長に対するシミュレーションの計算結果はFig.3に示すようになる。YAG (F.) の波長の方では数倍良い精度が、また第2高調波 (SH) では遥に悪い精度が期待される。然し $(R-1)_{\lambda r} \sim 0.15$ 位になると $R_0 \neq 1$ に由来する normalization errorが増えるため、ルビーとYAG (F.) の優劣はなくなる (Fig.4)。

C3-4932-12

Fig.3 Lidar measurement uncertainties and simulated measurements for the antarctic nonvolcanic model atmosphere. (a) Model scattering ratios and expected error bars. (b) Model scattering coefficients, simulated measurements (dots), and expected error bars. (c) Relative uncertainty in particulate backscattering, showing contributions by source. After Russell *et al.*¹³⁾

Fig.4 Lidar measurement uncertainties and simulated measurements for the Laramie, Wyoming model atmosphere. (a) model scattering ratios, simulated measurements (dots), and expected error bars. (b) Model backscattering coefficients, simulated measurements (dots) and expected error bars. (c), (d) Relative uncertainty in particulate backscattering, showing contributions by source. After Russell *et al.*¹³⁾

Table 1. Design parameters of airborne lidar
After Russell *et al.*¹³⁾.

Transmitter	Ruby	Nd: YAG
Wavelength (μm)	0.6943	1.064
Energy per pulse (J)	1.0	0.5
Pulse rep. rate (pps)	1.0	20.0
Beam divergence (mr)	1.0	1.0
Beam diameter (cm)	8.0	7.6
Receiver		
Telescope diameter (cm)	36	36
Field of view (mr)	2	2
Filter bandwidth ($\text{\AA}$)	10	10
Optical eff. to PMT	0.35	0.35
PMT quantum eff.	0.10	0.03
Sky background* ($\text{w}/(\text{m}^2 \text{srA})$)	2×10^{-4}	1.3×10^{-5}

*For zenith-viewing lidar flying above 6km, with sun near horizon.

火山活動が活発でその注入のためエアロゾルが増加して $(R-1)_{\lambda r} > 0.15$ となると、さらにこの傾向は増加し、⁹⁾ ルビー波長が有利となる。受信光子数積算値を n_p とすれば

$$\varepsilon_P/P = \sqrt{n_p}/n_p = 1/\sqrt{n_p}$$

となり、出力と繰返し数増加により如何程この counting error を小さくしても、ゾンデ測定誤差を併せ考えると上記の傾向が出てくる。以上に述べた純レイリー散乱層 ($R_0 = 1$ 基準面) 仮定法の他にこの仮定を除く方法が 2, 3 提案されている。

(ii) 2 波長比較法⁷⁾ (1), (2) 式からみられるように、

$$K = P_0 A T^2 \eta \delta z \quad (7)$$

はレーザーの波長と光学系のパラメータの関数である。それで 2 波長 λ, λ' で観測するときに対応する K, K' の比をよい精度で、例えば誤差が 0.1% 以内にとどまるように推定できれば、 P, P' を同様の精度で測定し $(\beta_M + \beta_D)/(\beta_M' + \beta_D')$ をきめうる。この比とゾンデによる β_M, β_M' 値と β_D の波長依存性 ($\sim \lambda^{-1}$) が判れば、純レイリー散乱層の仮定なしに β_D の高さ分布を

良い精度で決定できる。然し K'/K を $P_0'/P_0, \eta'/\eta$ の比などからきめようとすると、特に T'/T の誤差が案外大きく総合的に K'/K の誤差として 10% が見積られる。⁸⁾ 現在までにこの程度以上に巧妙な推定法が見出されていないので、客観的に良好と判断される成功例がないようである。天体の光等を利用して $T'/T, \eta'/\eta$ の比を良い精度できめることは原理的には可能であり、他の方法も考えうるであろう。ラマン、弾性両散乱併用法⁹⁾ では、 λ と λ' が充分近いので、 $K \approx K'$ となり、この点は救われるがラマン散乱断面積 β_{RN} は β_M の 1/1000 程度で何れも波長依存性は、 $\sim \lambda^{-4}$ であるので原理的には 2 波長法とよく似た方法がとれるとしても余程強力なライダー装置が設置されない限り、成層圏への適用は困難であろう。

(iii) 直線偏光送信光の偏光解消度測定法

Cohen ら¹⁰⁾ による提案であり、高さに対するエアロゾル濃度の相対値を算出する方法で $R_0 = 1$ 基準面の仮定は不要である。送信光を直線偏光にして打ち上げ、高さ $z_i, z_i + \delta z$ の範囲からくる後方散乱光の中で送信偏光面に平行と垂直の受信光を P_{ih}, P_{is} とし、エアロゾルの個数密度を $N(z)$ とし、高さ z_i と z_{i+1} で単一粒子による偏光解消度に全く差がないと仮定すれば、

$$N(z_i) = N(z_{i+1}) \prod_{n=2}^i C_n, \quad C_{i+1} = N(z_{i+1})/N(z_i) \quad (8)$$

$$C_2 = \frac{P_{2s}^* - \gamma P_{2h}^*}{P_{1s}^* - \gamma P_{1h}^*} \quad (9)$$

ここに

$$P_{i,j}^* = P_{i,j} z^2 (P_0 \eta \delta z)^{-1} \quad (10)$$

$$j = h, s, \quad \gamma \approx 0.015$$

γ は大気分子 1 個による偏光解消度で実験的に定められた値であり、エアロゾルによる解消度が分子によるものと異なる値をとれば如何なる値をとっても (9) により c_2 が求められ同様にして逐次 c_i まで求めうる。この方法の出発点では (9) の分母が 0 でないという仮定をしたことになり、 $R_0 = 1$ 基準面の存在しないときには矛盾なく全領域に適用できるが、 $R_0 = 1$ の面が実在

すればその付近は除外しなければ相対的プロファイルは定められないことになり(i)の方法とは相補的な関係が生じる。(i)と(iii)とは相反する2つの仮定から出発した2種類の解を提供できる筈である。Fujiwara¹¹⁾の研究によれば、 P_{is} は P_{ih} の1/100程度の大きさであり、Cohenら¹⁰⁾のデータには大きな疑問がある。ラマン散乱の観測よりは容易であっても、困難な観測目標の1つである。(i)の方法で10~15kmまたは24~35km付近に $R_0=1$ 基準面を想定する場合、エアロゾルピークで10%の精度をうるために、レーザーレーダーの必要積算出力を $\sum R_0 = P_{total}$ とすれば受信鏡50cmφのとき平均的エアロゾル濃度の場合には $P_{total} \sim 1000J$ の程度である。しかし上方の基準面を用いるときは下方を用いる場合よりも、40~100倍の P_{total} を必要とするので悪い条件のときには3000J位を要するのであろう。それで二波長を用いてこれに(i)の方法を併用するのが最も現実的であり、粒径分布のある程度の情報を獲得できる。¹²⁾しかし将来は K'/K の比を実験的に正確に定める方法を見出すことは望ましいことであり、(iii)の方法も強力なレーザーレーダー設置をまって試みるべきであろう。Fig.5には九大理のルビーライターにより(i)の方法を用いて1975—1978年の間に得られたRadar Cross Section ($4\pi\beta_D$)のピーク値の変化をしめす。1974年10月中米グアテマラの火山フェゴの大爆発のため、北半球では数ヶ月後にほと

Fig.5 Variation in the peak value of particulate scattering ($4\pi\beta_D$) observed by ruby lidar in Fukuoka.

Fig.6 Examples of vertical profile of particulate scattering layer observed by ruby lidar in Fukuoka.

んど全面的に成層圏エアロゾル濃度が急増し、以後数年をへて、1978年頃には静穏期の濃度に達した経年変化の様子がうかがわれる。Fig.6には1978年にえられたエアロゾル濃度のプロファイル $4\pi\beta_D(z)$ をしめす。

4. 色素レーザーレーダーによる熱圏下部ナトリウム層の観測

4.1 ナトリウム層と従来の観測法

地球大気圏の中間圏と熱圏とを分ける圏界面(高度約80km)の直ぐ上に、ナトリウムやカリウム、リチウムなどの金属原子の層が存在する。Fig.7に我々が色素レーザーレーダーで観測したナトリウム層を例示する。現在、これらの金属原子はその主要な起源が流星に求められており、大気との摩擦によって流星から放出された

Fig.7 Sodium layer observed by dye lidar in Fukuoka.

原子が、渦動拡散やその他の大気力学的過程と、酸化、還元、光電離などの化学的過程のバランスによって層をつくるものと考えられている。しかし後で述べるように、最近のNaとKの比較観測結果は、冬季に中高緯度で増加するNa原子の増加分の海水起源を示唆しており、これまで支持されることの少なかった海水起源説の再検討も促がされているようである。

ナトリウム層をはじめとする金属原子層は、その生成源の変化だけでなく、大気の運動や大気組成の変動にตอบสนองして変化するから、その定常的な観測は、層の生成機構の解明のみならず、特にバルーンや人工衛星などの定常観測の手段を有しない中間圏から下部熱圏にかけての、大気の運動や組成に関する知見を得るための、極めて有効な手段である。

ナトリウム層の観測の歴史は特に古く、すでに1920年代に夜間大気光中にNaD線が見出されていたが、1950年代に分光光度計を用いた薄明大気光の観測法が確立されるに及んで、世界の数ヶ所で定量的な観測が開始されるに至った。¹⁴⁾ この方法は、大気の下層が地球の影に覆われる薄明時に、太陽に照らされる上層大気中の特定原子による共鳴散乱光を地表で測定するもので、地球の影の高度領域が時間的に変化することを利用して原子の高度分布を決定することができる。この他に、高度分布は決定できないが、昼間大気光からのゼーマン効果によるNa原子散乱光の分離や、太陽光の共鳴吸収によってNa原子のコラム密度（個数密度高度積分値）を測定する方法がある。しかしこれらの方法はいずれも多くは仮定を含み、しかも大きな測定誤差を伴うという難点がある。

4.2 色素レーザーレーダー

色素レーザーを用いたレーザーレーダーの登場は、金属原子層観測史上将に画期的なことであった。非常に大きい散乱断面積を持つNa原子などの共鳴線に同調させて色素レーザー光パルスを打ち出し、上層大気中のその原子からの散乱光を受信することによって、従来の測定法

に比べて飛躍的な高精度でその分布を決定することができる。特にNa原子は個数も多く、また共鳴波長（Na D₂, 5899.95 Å）附近で色素レーザーの大出力が得られるので、夜間の観測は勿論、背景雑音光の強い昼間の観測にもすでに成功している。

金属原子層観測のための色素レーザーは、波長幅が狭く大出力であることが要請され、しかも観測の距離、時間分解能向上のためにパルス時間幅が短かく、発振繰り返しが早いことが望ましい。1回の観測には1000回のオーダーの発振を要するが、これを何百回も繰り返すことに耐え得る安定性も重要な条件である。現在イギリスのAppleton研究所¹⁵⁾やフランスの国立大気研究所¹⁶⁾など、世界の数ヶ所で色素レーザーレーダーによる観測が行なわれており、我々九州大学理学部でも色素レーザーを製作して昨年からナトリウム層の観測を開始している。以下に我々が製作した色素レーザーを中心として、ナトリウム層観測のための高出力色素レーザーの概要を述べたい。

現在各地で使用されているレーザーはいずれもフラッシュランプ励起方式で、放電管にはXe封じ込み型、同軸型、ablating wall型などが用いられているが、我々は発振パルス時間幅が短かく、しかも定常観測用として保守が容易で安価であることから、ablating wall型を採用した。¹⁷⁾ これは観測用としてはPettifer *et al.*¹⁷⁾によってかなりの改良が行なわれているが、我々は更に徹底的な改良を試みた。Fig. 8に製作した放電管を示す。放電管の破壊に至る最小の

Fig. 8 Flash lamp of the dye laser designed for the observation of sodium layer

入力エネルギー E_x としては次の経験式が知られている。

$$E_x = E_0 L D \sqrt{T}$$

但し、 L は放電長、 D は管の内径、 T は放電パルス幅で、比例定数 E_0 は管の肉厚などの管の強度条件に依存する。Fig. 8 で示された放電管は 500 J の入力で、しかも 10000 回以上の発振に耐えるように作られている。管の肉厚 5 mm で、電極に衝撃吸収のための空洞を設けた放電管は、発熱を抑えるためにイオン交換樹脂を通した循環水で常に冷却される。ablating wall 型の放電は、石英管の ablating によって気化された石英を通して起こるので、内部気体は真空ポンプで低圧に保たれた空気である。ablating によって石英管肉厚は放電毎に減少するので、最終的にはこれが管の寿命を決めることになる。ablating に引き続く石英の sputtering による汚れを防ぐために、電極の両端にはアクリルの空室を設けて管内の清浄を保つようにした。

Na 原子などの共鳴線ドプラ幅は、熱圏下部大気温度では 0.02 Å 程度なので、これにできるだけ近い狭帯域波長が望ましい。しかし、狭帯域化のための光学素子であるプリズムや grating, エタロン板などをレーザー共振器内に挿入すると、レーザー出力は大幅に減少してしまう。その上、一般にこれら光学素子の透過帯域幅は、入射ビーム発散角の増加に伴って広がるので、発散角が大きくなりがちな高出力レーザーでは、充分な狭帯域化が困難である。この矛盾は、増幅段を加えて、狭帯域化された初段の微弱出力を増幅することによって解決される。この際、最終出力が同じであっても増幅率の大きい方が狭帯域化に都合が良いことは言うまでもない。増幅の方式としては、従来の single path amplifier の他に、Magyer *et al.*⁽¹⁸⁾ によって開発された forced oscillation 方式がある。この方式の理論的解析は参考文献 19, 20) に詳しい。これまでナトリウム層観測のために使用されたレーザーはすべて前者の方式であるが、その増幅率は数 100 mJ の狭帯域化された出力を得る場合 3～5 倍が限度であったので、我々はこれより

はるかに大きい増幅率が得られる後者の方式を採用した。この方式は、発振段と増幅段の放電のタイミングの取り方が困難ではあるが、増幅率としては 100 倍程度も容易に得ることができる。Fig. 9 に我々が製作したレーザー共振器の構成を示す。同調光学素子としては 2 枚のエタロン板を使用している。

Fig. 9 Oscillator and amplifier geometry of the dye laser designed for the observation of sodium layer.

Na 原子共鳴波長を得るために色素は Rohdamine 6G が使用される。我々は、発振段にはセル内部温度変化によるビーム発散を抑えるために、容媒として水を用いた。色素濃度は 0.3×10^{-4} mol/l である。この結果、エタノール溶液の場合と比べて出力は $\frac{1}{2}$ に低下したが、波長幅を $\frac{1}{2}$ にすることができた。狭帯域化素子が必要としない増幅段には 1.0×10^{-4} mol/l のエタノール溶液を使用している。溶液は発振段 14 l/min, 増幅段 24 l/min で循環し、水冷で常温を保つ。なお、このレーザーの出力は、1.2 l の溶液で 300 回発振後には約 $\frac{1}{2}$ に減少する。この出力低下を抑えるための対策としては、フィルターによる溶液の同時ろ過や、セル外側に CuSO_4 溶液を流す方法などが有効ではないかと考えている。

Table 2. に世界の主要な研究機関のレーザー及びレーザーレーダーの諸特性を示しておく。我々のレーザーに関して言えば、現有の電源による制限のため、発振繰り返しの速さは未だ充分とは言えないが、それ以外の点では他に遜色ないものを製作できたと考えている。

Table 2. Characteristics of Dye lidars at the stations stationary observations of sodium layer are being conducted.

Station	Appleton Lab. Slough (England)	CNRS Buisson (France)	Inst. Perquisas Espaciais São Jose(Brazil)	Kyushu Univ. Fukuoka(Japan)
Transmitter				
Wavelength (μm)	0.5890	0.5890	0.7699	0.5890
Line width (nm)	0.003	0.0085	0.008	0.005
Energy per pulse (mJ)	200	1000	1000	5
Pulse duration (μs)	1	3	0.03	1
Pulse rep. rate (pps)	2	0.5	0.1	0.06
Beam divergence (mr)	0.3	0.5	0.5	
Receiver				
Telescope area (m^2)	0.6 (0.3 daytime)	0.52	0.52	0.39
Field of view (mr)	0.7(0.3daytime)	3	3	
Filter bandwidth ($\text{\AA}$)	10(0.5 daytime)	5	5	10

4.3 色素レーザーレーダーによる観測

ナトリウム層観測に対してもレーザーレーダー方程式は(1)式と本質的に同じものが適用されが、ナトリウム層はエアロゾル層に比べると光学的に厚いので、精度よくその分布を決定するためには、透過率の高度変化も考慮する必要がある。従ってレーザーレーダー方程式は次の様に変形される。

$$P(z) = (P_0 A T^2 \eta / z^2) \delta z \{ \beta_{Na}(z) + \beta_{Na}(z) \} \times \exp \left\{ -2 \int_z^\infty \alpha_{Na}(z) dz \right\} \quad (11)$$

ここで T は Na 原子以外の気体成分による透過率であり、 $\beta_{Na}(z)$ と $\alpha_{Na}(z)$ はそれぞれ Na 原子による後方散乱係数及び extinction 係数で、Na 原子個数密度 $n(z)$ と、吸収係数スペクトル分布 k_λ 及びレーザー光強度スペクトル分布 P_λ で定義される有効散乱断面積 σ_{eff} を用いて、次式で与えられる。

$$\beta_{Na}(z) = \frac{\alpha_{Na}(z)}{4\pi} = \frac{n(z)\sigma_{eff}}{4\pi}, \quad \sigma_{eff} = \frac{1}{P_0} \int k_\lambda P_\lambda d\lambda \quad (12)$$

このレーザーレーダー方程式によって計算された Na 原子個数密度分布の一例が Fig. 7 である。

色素レーザーレーダーを始めてナトリウム層の観測に適用したのはイギリスの Appleton 研

究所のグループである。²¹⁾ 当初はレーザー出力も数 mJ と弱く、波長幅も 1.5 Å と広がったので、観測には数夜を要したが、それまで定量的測定が不可能であった夜間ナトリウム層が、薄明時とほぼ同様のコラム密度を有することが判ったことは特筆するべきであろう。引き続いて彼らはレーザーの改良を行ない、1 時間足らずの観測でピーク付近では 500 m という驚異的な距離分解能で高精度のプロファイルを得ることができるようになった。¹⁵⁾ この様な観測で、ピーク高度より上で常に Na 原子個数密度が大気分子のそれより急速に減少することが確認された。このことは、層を形成する Na 原子が非常に狭い高度範囲で生成されることを示唆しており、ロケット搭載質量分析器によって電離圏に各種の流星構成元素イオンが見出されることと共に、流星起源説の有力な証拠とされるのである。

同じくイギリスのグループは、背景雑音光を減らすために狭帯域のフィルターと視野の狭い受信鏡を用いて、昼間ナトリウム層の精密な高度分布を測定することに成功した。²²⁾ 昼間ナトリウム層については、大気光のゼーマン光度計による測定²³⁾ と、太陽光吸収測定²⁴⁾ の結果が大きく異なっていた。一時は、昼間は薄明時や夜間の数倍にも増加するという前者の測定結果

が、その物理的解釈が充分なされないままに広く信じられていたようである。しかし、色素レーザーレーダーの観測結果はむしろ後者を支持し、ナトリウム量の系統的な日変化は殆んどないことを明らかにした。

ナトリウム層の季節変動については、色素レーザーレーダーによる観測結果は、この変動が正弦関数的ではなくて、北半球(イギリス 51°N 、フランス 44°N)では11月頃に急激に増加し、1月から3~4月にかけて徐々に減少して以後あまり変化をしないという結果が得られている。フランスのグループは更にカリウム層の観測を併行して行ない。カリウムには顕著な季節変動がなく、流星雨に伴ってNaと同時に一時的に増加することや、NaとKの比は夏には10(流星組成比に近い)程度だが冬には40~50(海水組成比に近い)にも達することなどを見出し、(Fig. 10)冬季のNa増加分は海水起源であると結論している。薄明観測によってもNaとKの同時観測は行なわれ、カリウムに顕著な季節変動がないことは知られていたが、上述の結論を

Fig. 10 Seasonal variations of sodium and potassium column densities and of their ratio observed in France. After Megie *et al.*¹⁶⁾

導くには至らなかった。この結論は大気力学的観点から極めて重要なことであり、冬季の大気下層から上層への物質輸送がもし確実ならば、その力学的機構が解明されなければならない。この問題は大气大循環と密接な関連を持つので、その解明のためにもナトリウム層やカリウム層、更にはより下層のエアロゾルやオゾン等の汎世界的な精密観測が要請されるのである。

色素レーザーレーダーによる観測は、最近では数分という短時間に高精度でNa原子の分布を決定できるようになったので、Na原子をトレーサーとして周期数分以上の大気波動を検出することが可能になった。熱圏のエネルギー源として、また電離圏の様々な現象の起因として大気波動は極めて重要な役割を担っているが、熱圏下部でこれを直接測定する手段は他に乏しく、この意味でも色素レーザーレーダーの果すべき役割はこれから益々大きくなるであろう。

Fig. 11 Variations of the height distribution of sodium in the zenith (a) and at 10°E to the vertical (b), observed in England. The curves represent the mean of all observations shown at each angle. After Thomas *et al.*²⁵⁾

Fig. 11にイギリスのグループが検出した大気波動の例を掲げておく。²⁴⁾ 全観測時間の平均プロフィールからのずれの、時間的に変動する様子が明らかである。これはナトリウム層高度の異なる2地点を交互に観測したもので、波動の水平方向伝播の様子も見る事ができる。なおより直接的には、ロケットから散布されたNa原子の雲を色素レーザーレーダーで追跡することによって、この高度領域の大気運動を測定する

試みも行なわれている。²⁶⁾

我々のナトリウム層観測は、開始してまだ期間が短かいのでデータの集積も少ないが、流星雨時の急激な増加や、大気重力波によるものと考えられる波動現象を検出することができた。大気の力学的構造の全体像を捉えるためにはグローバルな観測が必要であるが、緯度 30° 附近は定常観測のステーションに欠けているので、我々はこれから長期間にわたって観測を続ける予定である。特にレーザー発振頻度を大幅に増加させて時間分解能のよいデータを集積することにより、大気の力学的構造の研究に資することを目指す。

MAPの目標の一つである「太陽は中層大気の如何なるプロセスを通じて大気頂上に到達した紫外線、X線、粒子線などのエネルギーを気候変動のトリガーとなし得るか」という問題の解明のためには、このように成層圏から中間圏、下部熱圏に至る領域を特殊なトレーサーを用いて調査することが重要な鍵を提供するのではないかと考える。

5. XeCl レーザーレーダーによる成層圏オゾン層の観測

5.1 成層圏オゾン層

高度20~25kmにピークを持つ成層圏オゾン層は、1 ppm以下の濃度ではあるが、太陽紫外線の吸収および赤外輻射により成層圏の熱収支ひいては大気大循環に重要な役割をはたしている。特に280~320nmの紫外線の吸収は生物にとって重要である。また最近では成層圏を飛ぶSSTや人間活動の排気物であるエアロゾル、NO_x、フロンガスの増加により成層圏オゾン層が破壊され、紫外線の増加による皮膚ガンの増加が心配されている。したがってこれらの排気物をできるだけ少なくするとともに、オゾン層を常時モニターすることはますます重要になってきた。最近二つのグループによりフラッシュランプ励起色素レーザーの第二高調波を用いて差分吸収法により成層圏オゾン層のライダー観測がなされたが、²⁷⁾ 一方我々はXeClレーザーレーダ

ーによりオゾン層の観測に成功した。²⁸⁾

成層圏オゾン層は太陽光を利用したドブソン法(気柱の全オゾン量を測定)やオゾンゾンデにより世界各地で観測が続けられている。日本では気象庁によりゾンデの観測が行われているが、月1回程度である。ライダーによれば天気が良ければ常時観測ができるので前節のエアロゾル層との相関をみることのできる(負の相関の報告もある)。²⁹⁾ また下部成層圏ではオゾンは大気のトレーサーとしての役割をはたすので大気大循環を知る重要な手がかりとなる。特に圏界面付近のオゾンとエアロゾルのふるまいを調べることは対流圏一成層圏間の物の輸送を考える上で興味深い。

5.2 XeCl レーザー

紫外域のパルス高出力レーザー光源はここ数年間に急速に発達したエキシマーレーザーによって非常に豊富になった。特に希ガス-ハライド系のエキシマーレーザーは効率が良く、放電励起で容易に発振が可能なることから実用性が高い。XeClレーザーは最初効率の悪いレーザーと見なされていたが、最近になってKrFやXeFレーザーに匹敵する出力が得られることが明らかになった。^{30), 31)} 我々はXeClレーザーの発振波長(308nm)が、成層圏オゾン層の観測に適していることに着目し、ライダーへの応用に耐えうる放電励起レーザー装置を試作した。

Fig. 12 Configuration of XeCl laser; $C_1 = 0.22 \mu\text{F}$, $C_2 = 12 \text{ nF}$, and $C_3 = 63 \text{ nF}$.

試作したレーザーはFig. 12に示したような回路である。これは基本的には厚さ250 μm の平板マイラーシートコンデンサー C_3 よりなる高圧パルス整形回路を横形レーザー放電管で終端させたもので、二枚のシートコンデンサーを並列

に用いることによって特性インピーダンスは 0.038Ω まで低下させた。これは放電電流を増大させ、出力を高めるのに有効であった。 C_3 は25KVまで直流的に充電したプラスチックコンデンサー C_1 からトリガーギャップを通じて給電される。放電管はテフロンで内ばりしたアクリル製で3気圧まで耐える。主電極は有効長さ92cm, ギャップ長2.4cmで, 20mm ϕ のステンレス棒を対峙させたものである。予備電離は主電極上方に配置したギャップ長4mmの45個の電極のそれぞれにセラミックコンデンサーバンク C_2 より給電して行う。

ClドナーとしてHClを用いた時のレーザー出力は, HCl/Xe/He=3.5Torr/7Torr/3atmで125mJ (25ns FWHM) を得た。共振器は誘電体のエンドミラーと石英パラレン板一枚とで構成した。発振波長はXeClの $^2\Sigma_{1/2}^- \rightarrow ^2\Sigma_{1/2}^-$ 遷移の(0,0), (0,1), (0,2)のバンド構造がみられたが, そのうち後者の二つに対応する307.9nmと308.2nmに大部分のエネルギーが集中していた。出力エネルギーの約50%が5 mrad以下のビーム拡がり内にあった。ガスは封じ切りで, 15秒間隔で発振をくり返す時, 最初の100発で約25%減少し, 以後はより緩かに減少し, 500発程度はガスのつめ換えなしに使用できる。

5.3 オゾン層の観測とデータ解析

一般の二波長レーザーレーダーによる差分吸収方式に対し, ここではXeClレーザー波長による差分吸収でオゾン層の観測を行った。これは大気密度とエアロゾルが他の方法であらかじめわかっており, また大気の密度変動が緩やか

で, しかも成層圏エアロゾル層の影響は数%しか紫外では効いてこないのでこの一波長方式が可能となる。

オゾン観測に用いたライダー系の特性をTable 3に示す。Fig. 13は1978年6月12日の夜に1050発のパルスを打ち上げた時の $\delta h = 1$ km内の総フォトン数 P_r を高度別に図示したものである。

Fig. 13 Total received signal photon numbers $P_r(h)$ within an interval of 1km. Total shots are 1050 pulses. The dotted line represents $P_r(h)$ expected from the ozone free atmosphere.

点線はオゾンがない時予想される P_r である。16km以下ではフォトンカウンター系に飽和が見られる。さてこのデータに基き, ライダー方程式(1)を用いると, ある高度範囲 $h \sim h + \Delta h$ 間のオゾンのカラム密度 $N(h, \Delta h)$ は

$$N(h, \Delta h) = \frac{1}{2\sigma} \left[\ln \frac{P_r(h)}{P_r(h+\Delta h)} - \ln \frac{\beta(h)/h^2}{\beta(h+\Delta h)/(h+\Delta h)^2} - 2\tau(h, \Delta h) \right] \quad (13)$$

Table 3. Characteristics of XeCl laser lader

* Transmitter		* Receiver	
Wavelength	307.9, 308.2nm	Telescope diameter	50cm
Linewidth	0.7nm	Field of view	10mrad
Energy per pulse	50mJ	Filter bandwidth	20nm
Beam divergence	2×5 mrad	Photomultiplier	EMI 9558 QB [−25℃]
Pulse repetition rate	4ppm	Seperation from laser	14m

となる。ここで $\tau(h, \Delta h)$ は $h \sim h + \Delta h$ 間の大気分子とエアロゾルによる光学的深さ、 σ はオゾンの吸収断面積で、 $\sigma(308\text{nm}) = 1.3 \times 10^{-19} \text{cm}^2$ を用いた³²⁾ レイリー散乱及びミー散乱による β と τ は、同夜福岡管区气象台で上げられたラジオゾンデによる気圧と温度のデータより求めた大気密度よりレイリー散乱の項を、又翌日のルビーライダーによる Scattering ratio のデータよりミー散乱の項を計算した。他の分子(SO_2 等)による吸収は成層圏では殆んど無視できる。

(13)式より N の標準偏差 ΔN を求めると

$$\left(\frac{\Delta N}{N}\right)^2 = \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma}\right)^2 + \frac{1}{(2\sigma N)^2} \left[\frac{P_r(h) + P_b}{P_r^2(h)} + \frac{P_r(h + \Delta h) + P_b}{P_r^2(h + \Delta h)} + 2 \left(\frac{\Delta \beta}{\beta} \right)^2 \right] + \left(\frac{\tau}{\sigma N} \right)^2 + \left(\frac{\tau}{\sigma N} \right)^2 \left(\frac{\Delta \tau}{\tau} \right)^2 \quad (14)$$

となる³³⁾ ここで P_b は背景光と熱雑音による全光子数である。大気分子密度を n_a とすると

$$\frac{\Delta \beta}{\beta} \approx \frac{\Delta \tau}{\tau} \approx \frac{\Delta n_a}{n_a}$$

であるが、ここではラジオゾンデによる誤差は $\Delta n_a / n_a = 10^{-2}$ とした。また σ は温度によってわずかに変化するがデータに乏しいので $\Delta \sigma = 0$

Fig. 14 Ozone concentrations, $N(h, 1.5\text{km}) / 1.5\text{km}$, and their standard deviations observed by XeCl lidar during the night of 12 June in Fukuoka. (33°N). The dashed line represents the ozone concentrations measured by a radiosonde at Kagoshima (31°N) on 11 May, 1978.

とした。Fig. 14に1.5km 間隔のオゾンの平均密度 ($N(h, 1.5\text{km}) / 1.5\text{km}$) とその標準偏差を図示した。この観測値の比較のため約1月前の鹿児島でのオゾンゾンデの値を点線で示した。両者は標準偏差内でよく一致している。

5.4 ライダーによるオゾン観測精度の向上方法

Fig. 14から今回の観測誤差は20~50%でありこれは他の方法による誤差(10~30%)比べ少々大きい。この誤差を少なくするためには、 P_b の減少と P_r の増大を図ることが考えられるが、これらは技術的に可能である。最終的に精度を決めるのは(14)式で密度変動による項である。

Fig. 15 Calculated relative uncertainty, $\Delta N/N$ (1km), for three wavelengths. A Kagoshima ozone model is used. Lidar parameters for these wavelengths are explained in the text.

Fig. 15には大気分子・エアロゾル及び鹿児島のおゾンモデルと、(14)式で $\Delta \beta / \beta = \Delta \tau / \tau = 10^{-2}$ としたとき、レーザーの波長をパラメータにして各高度の誤差 $\Delta N/N(h, 1\text{km})$ を計算したものである。パルス当りの送信エネルギーは308nmに対し100mJ、他は10mJにした。また δh は σ の大きさの度合いに応じて長波長より順に1, 0.3, 0.1kmとし、ショット数は 10^4 、 P_b は今回の観測をもとにさらに一桁狭帯域の干渉フィル

ターを想定して $P_0=0.02$ 個/pulse・kmとした。ライダ系の透過率は1.5%である。これからレーザーの波長を290nm~308nmを組み合わせることにより10~30km間のオゾン距離分解1km, 誤差10~30%で観測できることがわかる。

XeCl レーザーは最近の研究によればガス封じ切りで15000発(>100mJ/pulse)以上が可能であり,³⁴⁾ KrFに比べはるかに化学的安定性がよい。一方300nm以下のレーザー光はフラッシュランプ励起色素レーザーのSHGが考えられるが, 高出力高速くり返しに難点がある。最近我々は放電励起XeClレーザーにおいて出力0.6J以上の装置を開発した。またXeClレーザーの発振波長は色素レーザーの励起に適した位置にあり, 340~710nmの波長域で非常に効率の良い色素レーザーを得た。³⁵⁾ これらの組み合わせによりレーザー励起色素レーザーのSHGが期待できる。また最近では波長282nmのXeBrも放電励起で効率のよい発振をしており,³⁶⁾ この波長を使えば上述のように低高度の測定精度が高められるであろう。さらに誘導ラマンなどの非線形効果を組み合わせれば波長は豊富となり, オゾンライダの二波長化はもちろん, 他のいろいろな大気成分の観測可能性もあり, 近紫外域でのライダはエキシマーレーザーの出現によって新しい領域が開けつつある。

参 考 文 献

- 1) 広野・藤原・内野: 気象研究ノート116 (1973) 87.
- 2) E. D. Hinkley (ed.): *Laser Monitoring of the Atmosphere*, Topics in Appl. Phys. 14 (Springer-Verlag, 1976).
- 3) G. Fiocco and G. Grams: J. Atm. Sci. 21 (1964) 323.
- 4) W. P. Chu and M. P. McCormick: Appl. Opt. (1979 May) to be published.
- 5) N. H. Farlow et al.: J. Geophys. Res. 83 (1978) 6207.
- 6) M. Fujiwara, T. Itabe, M. Hirono: Rep. Ionos. Space Res. Japan 29 (1975) 74, T. Itabe, M. Fujiwara, M. Hirono: J. Met. Soc. Japan 55 (1977) 606, M. Hirono, M. Fujiwara, T. Itabe, C. Nagasawa: J. Geomag. Geoelectr. 29 (1977) 541.
- 7) R. E. W. Pettifer, G. J. Jenkins, P. G. Healey and J. H. Convery: Opt. Q. E. 8 (1976) 409.
- 8) A. Slingo et al.: Meteorological Office, Bracknell, Met O 19 (unpublished).
- 9) M. P. McCormick, 8th Int. Laser Radar Conf. (June, 1977).
- 10) A. Cohen and M. Kleiman: J. Appl. Met. 17 (1978) 234, A. Cohen and M. Graber: J. Appl. Met. 14 (1975) 400.
- 11) M. Fujiwara: Mem. Fac. Sci., Kyushu Univ. Ser. B 5 (1976) 53.
- 12) Y. Iwasaka and K. Isono: J. Atmos. Terr. Phys. 39 (1977) 117.
- 13) P. B. Russell, R. A. Craig, W. G. Planet, M. P. McCormick, L. R. McMaster, T. W. Perry, D. Bruton, G. W. Grams, D. J. Murcray, T. J. Swisler, T. J. Pepin, W. P. Chu, and D. E. Cunnold: SAGE Ground-Truth Plan for NASA Langley Research Center (Oct. 1978).
- 14) D. M. Hunten: Space Sci. Rev. 6 (1967) 493.
- 15) J. Gibson and M. C. W. Sandford: J. Atmos. Terr. Phys. 33 (1971) 1675.
- 16) G. Megie, F. Boss, J. E. Blamont, and M. L. Chanin: Plan. Space Sci. 26 (1978) 27.
- 17) 前田・岡田・藤原・内野・宮副: 応用物理45 (1976) 534, T. Okada, K. Fujiwara, M. Maeda, and Y. Miyazoe: Appl. Phys. 15 (1978) 191.
- 18) G. Magyer and H. J. Schneider-Muntau: Appl. Phys. Letters 20 (1972) 406.
- 19) L. E. Erickson and A. Szabo: Appl. Phys. Letters 18 (1971) 433.
- 20) M. Maeda, O. Uchino, T. Okada and Y. Miyazoe: Japan J. Appl. Phys. 14 (1975) 1975, M. Maeda, T. Okada, O. Uchino and Y. Miyazoe: Japan J. Appl. Phys. 15 (1976) 1731, U. Ganiel, A. Hardy, and D. Treves: IEEE J. Q. E. QE-12 (1976) 704.
- 21) M. R. Bowman, A. J. Gibson, and M. C. W. Sandford: Nature 221 (1969) 456.
- 22) A. J. Gibson and M. C. W. Sandford: Nature 239 (1972) 509.
- 23) M. Gadsden, J. E. Blamont, and T. M. Donahue: J. Geophys. Res. 71 (1966) 5047.
- 24) C. R. Burnett, W. E. Lammer, W. T. Novak, and V. L. Sides: J. Geophys. Res. 77 (1972) 2934.
- 25) L. Thomas, A. J. Gibson and S. K. Bhattacharyya: Nature 252 (1974) 291.
- 26) D. Rees and M. C. W. Sandford: Nature 252 (1974) 291.
- 27) A. J. Gibson and L. Thomas: Nature 256 (1975) 561, G. Megie, J. Y. Allain, M. L. Chanin and J. E. Blamont: Nature 270 (1977) 329.
- 28) O. Uchino, M. Maeda, J. Kohno, T. Shibata, C. Nagasawa and M. Hirono: Appl. Phys. Letters 33 (1978) 807.
- 29) G. Grams and G. Fiocco: J. Geophys. Res.

- 72 (1967) 3523.
- 30) M. Maeda, T. Yamashita and Y. Miyazoe :
Japan J. Appl. Phys. **17** (1978) 969.
- 31) R. Burnham : Opt. Commun. **24** (1978) 161.
- 32) M. Griggs : J. Chem. Phys. **49** (1968) 857.
- 33) R. M. Schotland : J. Appl. Meteorol. **13**
(1974) 71
- 34) R. C. Sze and P. B. Scott : Appl. Phys.
Letters **33** (1978) 419.
- 35) O. Uchino, T. Mizunami, M. Maeda and Y.
Miyazoe : Appl. Phys. (1979) to be published.
- 36) R. C. Sze and P. B. Scott : Appl. Phys.
Letters **33** (1978) 479.