

ライダーの技術開発と大気微量成分の観測的研究への応用

—2018年度藤原賞受賞記念講演—

内 野 修*

1. はじめに

今回、藤原賞という大変名誉ある賞をいただき、また記念講演の機会を与えられましたことを深く感謝します。推薦そして選考して頂いた先生方に厚く御礼申し上げます。また、これまでレーザーやライダーの開発・観測を指導して頂いた先生方や一緒に研究を行ってきた多くの方に心より御礼を申し上げます。この機会に、これまで行ってきたライダーによる成層圏エアロゾルの観測、キセノン塩素 (XeCl) エキシマーレーザーの開発と成層圏オゾンの観測、誘導ラマン散乱 (Stimulated Raman Scattering, SRS) レーザーによる対流圏オゾンの観測を述べ、最後に狭帯域可変波長レーザーによる水蒸気観測および日本ではまだ実現していない衛星搭載ライダーへの期待などについて述べたいと思います。

2. ライダーによる成層圏エアロゾルの観測

1960年にルビーレーザー (波長694.3 nm) が発明された4年後には Fiocco and Grams (1964) がルビーレーザーレーダー (以下、ルビーライダーなどと略す) でアグン火山噴火による成層圏エアロゾル層の観測に成功しています。ライダーは、レーザーを送信し上空のエアロゾルなどから反射 (散乱) されて返ってくるまでの時間差から距離を、また、受信信号からエアロゾルなどの濃度を測定する装置です。九州大学理学部物理学地球物理広野研究室では1972年から成層圏エアロゾルの観測を開始しています。筆者が広野

研究室の博士課程の学生であった当時は、ルビーレーザーを上空に打ち上げ、大気からの後方散乱光を望遠鏡で受信し、光電子増倍管 (PMT) で電氣的信号に変え、その出力をオシロスコープ上に表示・写真撮影・現像・拡大して、地上から高度12 km まではアナログ信号を読み取り、それ以上では光電子数を目視で数えて成層圏エアロゾルの観測を行っていました (Hirono *et al.* 1972a)。

その後、広野研究室の指導により地元の小さな会社で光電子計数装置 (フォトンカウンター) が開発され、成層圏エアロゾル層の観測が容易となりました。ルビーライダーやネオジウムヤグ (Nd:YAG) レーザー (以下ヤグレーザーと略します) の2波長 (1064 nm と 532 nm) を利用したヤグライダーによるフェゴ、セント・ヘレンズ、エルチチオン火山噴火後の成層圏エアロゾルの変動とその地球規模の輸送過程などについては広野 (1985) に詳しく述べられているのでそちらを参照して下さい。

1990年代に入り、市販の小型ヤグレーザー、望遠鏡、冷却器付き PMT、アナログ・デジタルコンバーター、フォトンカウンターが手に入るようになり、数ヶ月間で可搬型の小型ヤグライダーを製作できるようになりました。折しも、1991年6月15日にフィリピンのピナトゥポ火山 (15.1°N, 120.4°E) の大噴火が起こったことから、筆者が1983年10月から勤務していた気象研究所内でヤグライダーによる観測を強化するとともに、小型のヤグライダーを急遽製作し沖縄気象台で1991年9月から観測を開始しました。また、通信総合研究所 (現情報通信研究機構) は稚内で観測を開始し、沖縄から稚内に至る日本のライダーネットワークにより初期段階のピナトゥポ火山噴火起源エアロゾルの観測が行われました (Uchino *et al.* 1993)。この後、1992年4月から3年間の科学技術振興調整費 (省

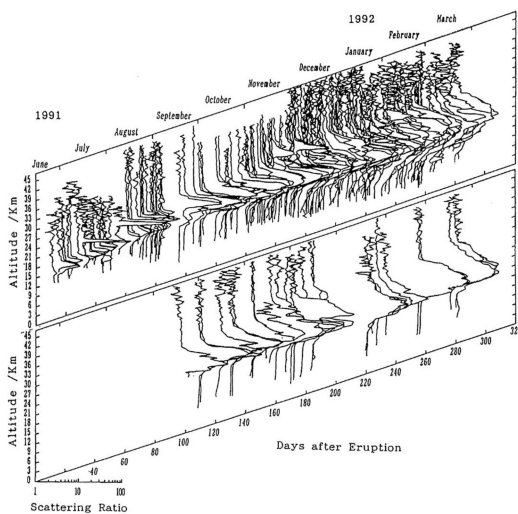
* 国立環境研究所衛星観測センター、
uchino.osamu@nies.go.jp

—2018年8月31日受領—
—2018年12月18日受理—

際基礎研究)「ピナトゥボ火山噴火が気候・大気環境へ与える影響解明に関する研究 (Effects of the Pinatubo Eruption on Climate, EPIC)」のプロジェクト (研究リーダー 内野) が開始されました。

第1図につくばと那覇における波長532 nmのライダー観測から得られたピナトゥボ起源エアロゾルの高度分布の時間発展の様子を示します (Uchino *et al.* 1995a). 時間 (y) 軸は火山噴火後の経過日数を、縦 (z) 軸は高度を、横 (x) 軸は散乱比 $R(z)$ を表します. $R(z)$ は大気分子からのレーラー後方散乱係数 $\beta_R(z)$ に対する全後方散乱係数 $\beta(z)$ の比を表します. ここで, $\beta(z) = \beta_R(z) + \beta_A(z)$ で β_A はエアロゾルの後方散乱係数です. したがって, $R = 1$ の場合には, 大気分子のみからの散乱となります. $R > 1$ の場合には大気分子とエアロゾルの両方の散乱となります. 成層圏のバックグラウンドの散乱比はたかだか1.1程度です. 噴火後, エアロゾルはチベット高気圧の周りを時計回りに輸送され, およそ2週間かけて6月28日につくば上空15.7 km に到達しました. その後, 7月には21.7 km に $R = 7.3$ のピークを持った新しい層が現れました. 高度約20 km 以上の風系が東風から西風に変化するのに伴って徐々にエアロゾルの高度方向の厚みも増しました.

那覇では9月19日からライダー観測を始めました



第1図 1991年6月15日フィリピンのピナトゥボ火山噴火後, 波長532 nmのライダーを用いて, つくばと那覇で観測された散乱比高度分布の時間変化. 那覇は同年9月から観測を始めた (Uchino *et al.* 1995a).

が, この時にはすでに高度18~28 km に及ぶエアロゾル層が観測されました. また, 送信したレーザー (直線偏光) の偏光面に平行な成分の受信信号に対する垂直な成分の受信信号の比である偏光解消度の観測から非球形の火山灰粒子がエアロゾル層の下層に存在していることが分かりました (Nagai *et al.* 1993). なお, 球形の粒子からは垂直成分は受信されず偏光解消度は0になります.

さらに気球に搭載したインパクターにより直接採集された成層圏エアロゾルを電子顕微鏡で詳しく解析してみると, エアロゾル粒子の中に核がなかったことから, 硫酸粒子は亜硫酸ガスからできた硫酸ガスの均一核生成 (homogeneous nucleation) によるものと推測されました (Wu *et al.* 1994).

EPICの研究から以下のようなことが分かりました. ピナトゥボ火山噴火後, 成層圏エアロゾルは急増するとともに全球に広がり, 気候・地球環境に大きな影響を及ぼしました. すなわち, 全球下部成層圏 (30~100 hPa) の気温は噴火後2°C急上昇し, 対流圏気温 (300~850 hPa) はエルニーニョの発生にもかかわらず約0.2°C下降しました (Kawamata *et al.* 1992). エルニーニョ発生の約半年後から対流圏気温は上昇することが知られています. 低緯度の火山噴火があった翌年 (1964年アグン, 1983年エルチヨン, 1992年ピナトゥボ) 1月の下部対流圏の気温は, 3つの噴火ともヨーロッパ, 東シベリア, 北米で顕著な昇温が, 西シベリアでは降温が解析されました. これは低緯度の火山噴火が成層圏気学過程を通して, 地域的な対流圏気温に影響を及ぼす例です (Kodera 1994). 成層圏オゾンは急増したエアロゾルの表面で起こる光化学反応過程により, 例えば, 札幌上空の高度10~20 km では1985~1991年の平均値に比べて約30%と大きく減少しました (Kondo *et al.* 1995).

ライダーによる成層圏エアロゾルの観測は, その後, 気象研究所の経常研究, 科学技術振興調整費「成層圏の変動とその気候に及ぼす影響に関する国際共同研究」(1996~2000), 温室効果ガス観測技術衛星 (GOSAT) の検証などの予算の中で継続されてきました. 第2図はつくば (36.1°N, 140.1°E) とニュージーランドのLauder (45.0°S, 169.7°E) における成層圏エアロゾルの長期変動を示します (Sakai *et al.* 2016). 縦軸は波長532 nmの $\beta_A(z)$ の第一圏界面から33 kmまでの高度積分値 IBC (Integrated Backscattering Coefficient) を表します. 但し, つくばの

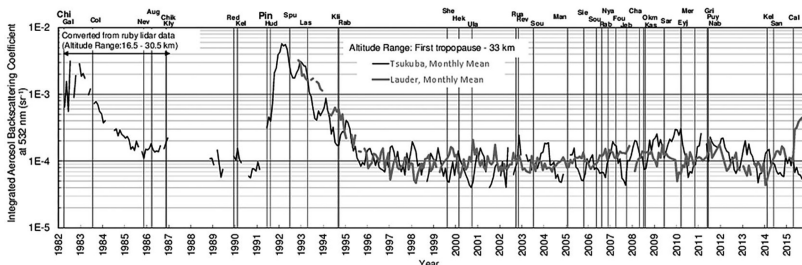
1982～1986年のIBCはルビーライダーの送受信光軸の問題(内野ほか1987)などから積分高度は16.5～30.5 km (Uchino *et al.* 1988)で、気球搭載のオプティカルカウンターで観測された成層圏エアロゾルの粒径分布を用いて694.3 nmから532 nmのIBCに変換しています(Jäger and Deshler 2003)。

つくばではエルチションとピナトゥポ火山噴火後IBCは急増しています。最大である1992年2月のIBCの値は年平均値が最小である1999年の値の99倍です。火山爆発指数(Volcanic Explosivity Index)が4以上の火山噴火が数回起こった2008～2011年のIBCは1997～2001年のバックグラウンドレベルのIBCに比べ倍増し、この期間の成層圏エアロゾルの放射強制力は、同期間の二酸化炭素の増加による正の放射強制力の大部分を打ち消すほどでした(Uchino *et al.* 2012a)。LauderのIBCはピナトゥポ火山噴火後の1992年11月が最大値を示し1999年にかけて減少しています。2015年チリのカルブコ火山噴火によりIBCがバックグラウンドレベルに比べ数倍増加するとともに、同年10月の南極オゾンホール拡大にも影響を及ぼしています(Solomon *et al.* 2016)。

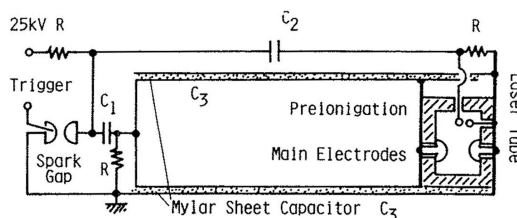
ライダーによる成層圏エアロゾルの観測の有利な点は、パッシブセンサーを用いた衛星観測では困難な中高緯度の圏界面から15 kmまでのかなりの量のエアロゾルを観測できることです(Ridley *et al.* 2014)。成層圏エアロゾルは地球システムに対して負の放射強制力を示すことから、気候変動を理解するためにもライダーによる観測の継続が重要です。

3. キセノン塩素(XeCl)エキシマーレーザーの開発と成層圏オゾンの観測

筆者は、広野研究室に在籍していたときから色素レーザーの共同研究を行っていた九州大学工学部電気工学科の宮副・前田研究室で1974年4月から83年9月までレーザーの開発研究に携わる機会に恵まれました。まず、中間圏ナトリウム(Na)層の観測のためにフラッシュランプ励起色素レーザーのファブリーペ



第2図 つくばとLauderで観測された波長532 nmにおける成層圏エアロゾルの後方散乱係数の高度積分値IBCの月平均値の時間変化。つくばは1982年から、Lauderは1992年から2015年まで(Sakai *et al.* (2016)から月平均値のみをプロット)。



第3図 UV予備電離放電励起XeClエキシマーレーザーの構造(Uchino *et al.* 1978)。

ローエタロンを用いたレーザー線の狭帯域化とナトリウム(Na) D線へのNaセルを用いた同調技術および注入同期による高出力化を行いました(前田ほか1973; Maeda *et al.* 1975)。広野研究室では、その技術を発展させたライダーでNa層の観測が行われました(Nagasawa *et al.* 1980)。

クロロフルオロカーボン(CFC)類によるオゾン層破壊の可能性が指摘され始めた頃(Molina and Rowland 1974)、フラッシュランプ励起色素レーザーの第2高調波(SHG)である紫外線(波長300 nm付近)レーザーによる成層圏オゾンの測定を試みましたが報告されました(Gibson and Thomas 1975; Mégie *et al.* 1977)。一方、筆者らは丁度そのころ研究が始まりかけていたキセノン塩素(XeCl)エキシマーレーザーの発振波長(308 nm)が、成層圏オゾン層の観測に適していることと高出力の可能性があることに着目し、放電励起XeClレーザー装置を試作することにしました。

試作したレーザーは第3図に示すような回路です。これは厚さ250 μmの平板マイラーシートコンデンサーC₃を横型放電管(レーザー管)で終端させたもので、XeClレーザーを効率よく発振させるため、立

ち上がりの早い放電励起が可能です。C₃は25 kVまで充電したプラスチックコンデンサーC₁からスパークギャップを通じて充電されます。放電管はテフロンで内張りしたアクリル製で3気圧まで封入できます。主電極は直径20 mmのステンレス棒を対峙させたもので、有効長92 cm、ギャップ長は2.4 cmです。予備電離は主電極上方に配置したギャップ長4 mm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C₂より給電して行いました。各ガス圧をそれぞれHCl/Xe/He = 3/7/2280 Torrにした時、出力エネルギー125 mJ (パルス幅25 ns) が得られました。

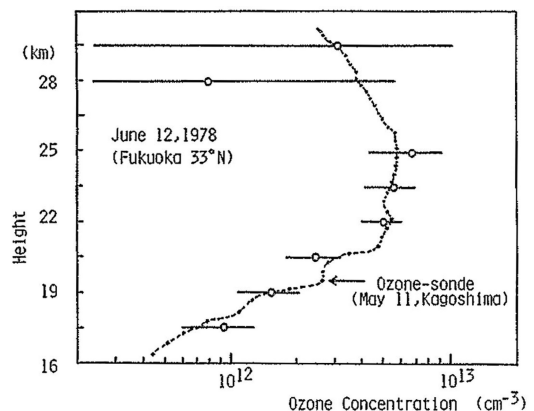
通常、差分吸収法ライダー-DIAL (Differential Absorption Lidar) は、測定したい分子の吸収の大きな波長と小さな波長の2波長のレーザーを利用します。吸収の大きなライダー受信信号は吸収の小さなライダー受信信号に比べて減衰が大きく、この2波長の異なる高度の受信信号の比から、それらの高度間の濃度をDIALで測定できます。しかし、ここではXeClレーザーの1波長のみの差分吸収でオゾン層の観測を行いました。大気密度があらかじめゾンデ観測などから分かっていると、異なる高度間のXeClライダー受信信号の比から大気分子による後方散乱と減衰の項を差し引くことによってオゾン濃度を測定できます (Uchino *et al.* 1978)。また、バックグランドレベルの成層圏エアロゾルの影響は数パーセントしか紫外では効いてこないで1波長方式が可能となります。オゾン観測に用いたXeClライダーの特性を第1表に示します。このXeClレーザーと広野研究室の受信システムとを組み合わせたライダーによって1978年6月12日の夜間に測定されたオゾンの高度分布を第4図に示

第1表 XeClライダーシステムの特性.

送信部	
波長	307.9, 308.2 nm
ライン幅	<0.7 nm
出力エネルギー	50 mJ
ビーム広がり	2 × 5 mrad
繰り返し率	0.67 Hz
受信部	
望遠鏡の口径	50 cm
受信視野	10 mrad
フィルター幅	20 nm
PMT	EMI 9558QB
レーザーからの距離	14 m
フォトンカウンター	
高度分解能	500 m
チャンネル数	80

します。また、同年5月11日に鹿児島地方気象台でオゾンゾンデを用いて測定されたオゾン分布も示しています。ライダーは測定誤差範囲内で高度16~25 kmのオゾン分布を測定できており、装置が簡単なことから、XeClレーザーは下部成層圏オゾン観測に期待が持てることが分かりました (Uchino *et al.* 1978)。そこで、観測中に放電破壊を起こし、その場で緊急に修理したマイラーシートコンデンサーを、長期のライダー観測に耐えうるセラミックコンデンサーに換え、より簡単で安定なXeClレーザーを製作し下部成層圏オゾンの観測を1979年9月から1981年12月まで行い、XeClレーザーが成層圏オゾン層の観測に有効であることが分かりました (Uchino *et al.* 1980; Uchino *et al.* 1983a)。

大気密度の変動が大きくまたゾンデも到達できない上部成層圏までのオゾンを観測するにはより高出力のレーザーと2波長を利用したDIALが必要です。そこで、1988年気象研究所で補正予算により市販品のXeClレーザーとヤグレーザーの第3高調波(355 nm)を組み合わせたDIAL (MRI Mark II ライダー)を開発しました。また、532 nmのレーザーも上部成層圏の気温を測定しオゾンの吸収断面積の温度依存性に反映するとともに、下部成層圏のエアロゾルを観測し、オゾン測定に対するエアロゾルの影響評価やエアロゾルとオゾンの関係を調査するためにDIALに組み込みました。望遠鏡は口径80 cmのカセグレン



第4図 1978年6月12日の夜間に福岡(33°N)でXeClライダーを用いて測定されたオゾンの高度分布。横棒は測定誤差を示す。波線は同年5月11日鹿児島(31°N)でオゾンゾンデを用いて観測されたオゾン高度分布 (Uchino *et al.* 1978)。

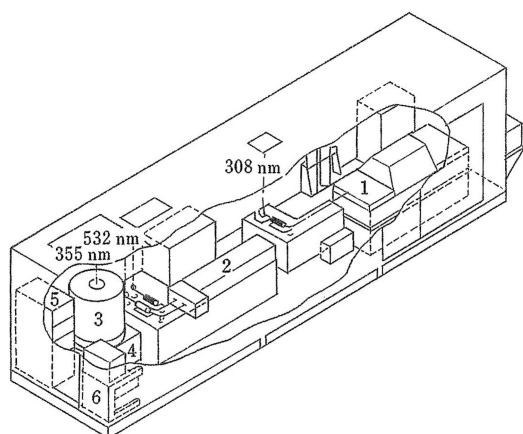
型を新しく製作しました。下層大気からの強い信号がPMTに入ると、ある高度以上では大気からのライダー受信信号に対するPMTからのノイズ (Signal Induced Noise, SIN) の割合が大きくなり、オゾン濃度を測定できなくなります。それを防ぐために、望遠鏡の焦点にレーザー発振と正確に同期した高速回転の受信チョッパー (シャッター) を取り付け、下層大気からの強い信号がPMTに入らないようにしました。また、受信チョッパーを用いない下層大気の観測には、PMTに電気的なゲートを架けPMTの感度を短時間大きく下げてSINなどが出ないようにしました (Uchino and Tabata 1991)。DIALの外観図を第5図に、特性を第2表に、測定例を第6図に示します。第1表に比べ第2表のXeClライダーの送・受信能力は約200倍に増加し、オゾン濃度のピークを乗り越えて高度40 km付近までのオゾンが計測できているのが分かります。

XeClレーザーをベースにした成層圏オゾンDIALはCFC類による成層圏オゾン破壊が進行しつつあった1980年代後半から他機関でも開発され (Pelon *et al.* 1986; McDermid *et al.* 1990; Nakane *et al.* 1993), オゾンDIALはエアロゾルライダーとともにNDSC (Network for the Detection of Stratospheric Change, 現在はNDACCと改称) の主要機器の一つとして長期間の観測が行われるとともに、WMO/

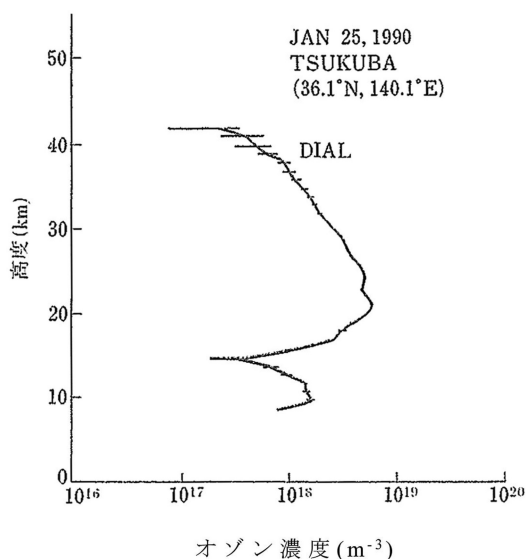
UNEPによるオゾン層破壊の科学アセスメントなどで成層圏オゾントレンドの解析に利用されてきています (Pawson *et al.* 2014; Steinbrecht *et al.* 2017)。なお、ピナトゥボ火山噴火により下部成層圏エアロゾルが増加した時に、エアロゾルの影響を軽減するためにラマンオゾンDIALの手法が開発されました (McGee *et al.* 1993)。

第2表 気象研究所で開発した成層圏オゾンDIALの特性。

送信部			
レーザー	Nd:YAG	XeCl	
波長 (nm)	355 532	308	
出力エネルギー (mJ)	130 100	110	
繰り返し率 (Hz)	20 20	80	
ビーム広がり (mrad)	0.1 0.1	0.15	
受信部			
望遠鏡口径 (cm)	80 (F=4)		
受信視野 (mrad)	1.0, 2.0		
受信チョッパー (Hz)	400		
波長 (nm)	355 532	308	
フィルター幅 (nm)	1.55 0.88	1.88	
透過率 (%)	16.5 48.2	9.4	
全光学的効率 (%)	7.7 4.7	4.7	
PMT	R331 (-20°C)		



第5図 1988年に気象研究所で開発された成層圏オゾンDIAL。
1: XeClレーザー, 2: Nd:YAGレーザー, 3: 受信望遠鏡, 4: 検出部, 5: 信号処理部, 6: データ処理部 (Uchino and Tabata 1991)。



第6図 気象研究所で開発されたオゾンDIALで1990年1月25日に観測されたオゾン高度分布。横棒は信号対雑音比から計算された測定誤差を示す (Uchino and Tabata 1991)。

4. 誘導ラマン散乱 (SRS) レーザーによる対流圏オゾンの観測

対流圏のオゾン濃度は高度25 km 付近の成層圏のオゾン濃度に比べて一桁低いので、波長308 nm よりオゾン吸収断面積の大きい短い波長のレーザーが必要です。Browell *et al.* (1983) はヤグレーザー励起色素レーザーの SHG (290 nm 付近) を利用しましたが、色素レーザーの場合、発振波長の波長制御に用いているフアブリーペローエタロンの温度制御などが必要です。筆者らは装置が簡単で波長制御の必要がない高出力の KrF エキシマーレーザー (波長248.4 nm) 励起によるメタンの誘導ラマン散乱 (Stimulated Raman Scattering, SRS) の第 2 ストークス線 290.4 nm のレーザーを開発することにしました (Uchino *et al.* 1979)。

ラマン散乱は、光と分子の相互作用により、入射光に対して分子の振動エネルギー分だけエネルギーが減少 (増加) し波長の長い (短い) ストークス線 (反ストークス線) が発生する非弾性散乱です。反ストークス線はストークス線に対して発生しにくく、強い KrF レーザー光を高気圧のメタンガス中に入射すると、最初自然放出のストークス線が発生し、それが種となって SRS の第 1 ストークス線 (267.8 nm) が発生し、さらに第 1 ストークス線により第 2 ストークス線 (290.4 nm) のレーザーも発生するようになります。KrF レーザーの波長 (248.4 nm) もメタンの振動エネルギーも決まっているので、第 2 ストークス線の波長も決まり波長制御の必要はなくなります。

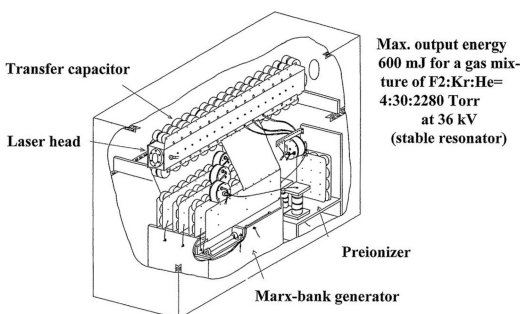
そこで第 7 図に示すような KrF エキシマーレーザーを開発しました。UV 予備電離放電励起型レーザーで、放電管の両側に配置したセラミックの Transfer capacitor を 3 段のマルクスバンク回路で充

電するタイプです (前田ほか 1981)。反射率100% (曲率半径 $r=6$ m) の誘電体蒸着ミラーと放電管の CaF_2 窓 ($r=\infty$) により構成された共振器を用い、放電管内のガス混合比を $\text{F}_2/\text{Kr}/\text{He}=4/30/2280$ Torr、充電電圧を 36 kV にした時、KrF エキシマーレーザーの最大出力 600 mJ (パルス幅は約 50 ns, 12 MW) が得られました。このレーザー管を XeCl レーザーとして使用すると、 $\text{HCl}/\text{Xe}/\text{He}=3.5/15/2280$ Torr の時、充電電圧 34 kV で最大出力エネルギー 450 mJ, パルス幅 40 ns, 11 MW のレーザー出力が得られました。

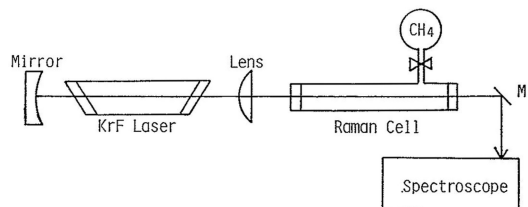
効率の良い SRS を得るためには、励起光の強度を $100\sim 1000$ MW/cm² 程度にすることが必要です。そこで、レーザー共振器を前述の安定型から、第 8 図に示すような不安定型にした時、エネルギーは約半分に減少しましたが、レーザービームは 1×2 mm² 程度に絞込みことができ、その結果ピーク強度は約 5 倍 (パルス幅 32 ns) の 375 MW/cm² まで増加しました。

強いレーザー光を高気圧のガス中に入射し、効率よく SRS を取り出すためのラマンセルには、直径 3.4 cm, 長さ 1 m のステンレス管を使用し、テフロンをパッキングとし窓材に厚さ 2 cm の石英板を用いました。ラマンセルに 32.5 気圧のメタンガスを封入して、KrF エキシマーレーザー (出力 118 mJ, パルス幅 32 ns) で励起した時、メタンの第 1 ストークス線 S_1 (267.8 nm) 及び第 2 ストークス線 S_2 (290.4 nm) の出力は 14.6 mJ (パルス幅 9 ns) と 4 mJ (パルス幅 6 ns) が得られ、エネルギー変換効率に直すと 12.4% と 3.4% でした。

このメタンの S_2 のレーザーと XeCl レーザーの 2 波長からなる DIAL で対流圏のオゾン測定を試みしました (Uchino *et al.* 1983b)。そのライダーシステムのブロック図を第 9 図に示します。 S_2 レーザーの出



第 7 図 誘導ラマン散乱 (SRS) 用に開発された UV 予備電離放電励起型 KrF エキシマーレーザー。



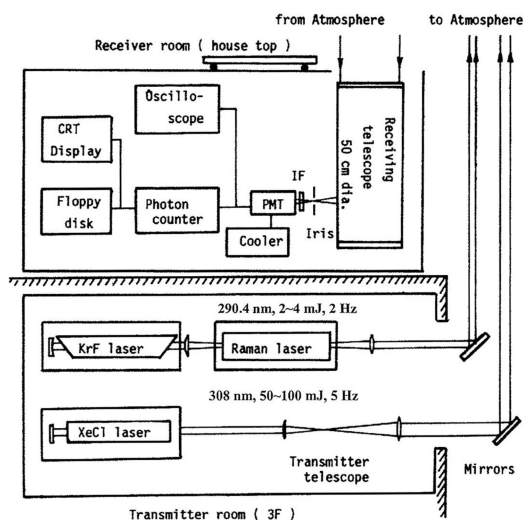
第 8 図 不安定型共振器を用いた KrF エキシマーレーザーによるメタンガスの誘導ラマン散乱 (SRS) 実験。分光器により SRS の波長を測定 (前田ほか 1981)。

力は2~4 mJでパルス繰り返し数 (PRR) は2 Hzです。一方, XeCl レーザーの出力は50~100 mJでPRRは5 Hzです。受信望遠鏡は, 中層大気国際共同観測計画 (Middle Atmosphere Program, MAP) の予算により製作されたもので, ナスミスクータイプで口径は50 cmです。干渉フィルターの半値全幅は2.9 nmで透過率は12%でした。PMTには-20°Cに冷却したEMI9558QBを用いました。フォトンカウンターの距離分解能は1 μsでチャンネル数は1000です。このDIALにより1983年1月25日に測定された対流圏のオゾン高度分布を第10図に示します。高度4 kmから12 kmまで測定できていることが分かります。

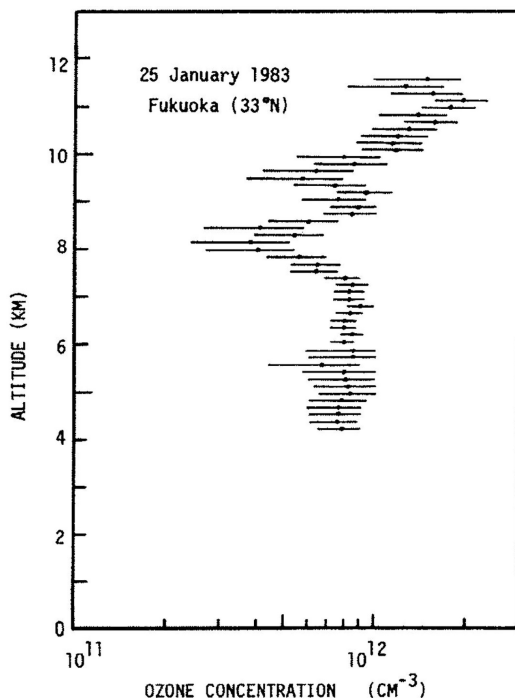
その後, XeClやKrFエキシマーレーザーやヤグレーザーの第4高調波 (FHG, 波長266 nm) 励起による水素 (H₂) や重水素 (D₂) ガスのSRSレーザーを利用したDIALは, 対流圏や成層圏のオゾン観測に多く用いられてきています。一方, Nakazato *et al.* (2007) はヤグレーザーのFHGによる炭酸ガス (CO₂) のS₁ (276 nm), S₂ (287 nm), S₃ (299 nm) の3波長が対流圏のオゾンDIAL観測に適していることを示しました。Ancellet *et al.* (1989) はヤグレーザーのFHGを二つに分けて重水素と水素の2本のラマンセルを励起することにより, 重水素のS₁ (289 nm) と水素のS₁ (299 nm) を用いて対流圏の

オゾンDIAL観測を行いました。炭酸ガスを用いると1本のラマンセルにより287 nmと299 nmのレーザーが得られるとともに, エアロゾルが多い高度2 km付近までのオゾン観測に適した276 nmと287 nmのレーザーも得られます。但し, 炭酸ガスのS₃までのレーザーの出力を8 mJ程度得るにはヤグレーザーのFHGの出力はパルスあたり80 mJ程度以上の高出力が必要です。

この炭酸ガスのS₁~S₃を利用した対流圏オゾンDIALを, 温室効果ガス観測技術衛星GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) 搭載のフーリエ変換分光計 (Fourier Transform Spectrometer, FTS) の熱赤外 (Thermal Infra-Red, TIR) バンドから導出される対流圏下層のオゾンカラム量の検証等のために, 2009年度補正予算により国立環境研究所 (NIES) で開発しコンテナに搭載しました。また, 同じコンテナ内にGOSATの短波長赤外 (Short-Wavelength InfraRed, SWIR) バンドから導出される乾燥空気に対する二酸化炭素やメタ



第9図 メタンの第2ストークス線290.4 nmとXeClエキシマーレーザーの308 nmの2波長を用いた対流圏オゾンDIALの構成 (Uchino *et al.* 1983b)。



第10図 第9図に示したDIALで測定された対流圏オゾン高度分布。横棒は信号対雑音比から計算された測定誤差 (Uchino *et al.* 1983b)。

ンのカラム平均濃度 (Yoshida *et al.* 2011) に対するエアロゾルや薄い巻雲の影響を調査するために、すでに製作していたヤグライダー (Uchino *et al.* 2012b) も搭載した GOSAT プロダクト検証用可搬型ライダーを開発しました。

NIES で 1 年間主にオゾン DIAL の調整と予備観測を行った後、第11図に示すように、2011年 3 月 GOSAT の検証に適した平坦な佐賀平野にある佐賀大学工学部の側に移設し観測を継続しています。なお、すぐ横には宇宙航空研究開発機構 (JAXA) が参加している TCCON (Total Carbon Column Observing Network) の高分解能 FTS が GOSAT の検証に用いられています (Ohyama *et al.* 2015)。この DIAL は、下層雲が無い時には高度 6 km までのオゾン分布を昼夜関係なく 30 分の時間分解能で観測できます。高度分解能は 0.5~2 km の範囲では 270~540 m で、2~6 km では 540 m です。

この可搬型ライダーにより GOSAT の TIR バンドから得られる高度 1~6 km のオゾンカラム量の比較を行ったところ、TIR のカラム量が DIAL に比べて 12.3% 低く相関係数は 0.83 でした (Ohyama *et al.* 2016)。なお、オゾンゾンデとの比較でも TIR が低くなっていることから、その原因について今後も調査が必要です。

2012年の 1 年間の高度 1~6 km のオゾン DIAL 観測結果と気象研究所の対流圏-成層圏化学気候モデル MRI-CCM2 (Deushi and Shibata 2011) で計算されたオゾンとの比較も行いました。モデルの結果は観測と良く合っていました。高度 2 km 付近の高濃度オゾン層や 7 月中旬~8 月の大陸性大気と海洋性大気の入替わりによるオゾン濃度の大きな変動をうまく再現できない場合があります (Uchino *et al.* 2014)。

2015年 3 月 20~31 日の期間に天気の良い時間を除いて可搬型ライダーの連続観測を行ったところ、3 月 22 日 3 時から 22 時まで高度 0.5~1.5 km に高濃度のオゾンとエアロゾルがほぼ同時に観測されました (第12図, 第13図, Uchino *et al.* 2017)。オゾンの最大濃度は 110 ppb に達しました。エアロゾルの消散係数と光学的厚さ (AOD) の最大値は波長 532 nm でそれぞれ 2.1 km^{-1} と 2.1 でした。ここで、ライダーの AOD は、エアロゾルの後方散乱係数に対する消散係数の比であるライダー比を 50 sr と仮定して計算しました。なお、ライダー比は窒素分子のラマン散乱を利用すると直接求めることが可能です (Ansmann *et al.* 1990 ;

Voltaire *et al.* 2017)。

空気塊の後方流跡線解析や気象研究所のエアロゾルモデル MASINGAR (Model of Aerosol Species In the Global Atmosphere) mk-2 (Tanaka *et al.* 2003) と MRI CCM2 のシミュレーション結果から、ゴビ砂漠からの黄砂と華北平原からの高濃度のオゾンと主に硫酸塩からなるエアロゾルが 2 日以内で観測点に運ばれてきたことが分かりました。これらの高濃度オゾンとエアロゾルは昼間境界層が発達するとともに境界層内に取り込まれ、3 月 22 日午後の上の大気質に大きな影響を及ぼしたと考えられます。すなわち、佐賀県環境センターによる佐賀市高木町での地上観測によるとオキシダント (オゾン) 濃度の最大値は 16 時に 101 ppb に、PM2.5 の最大値は 15 時に $110 \mu\text{g m}^{-3}$ 、24 時間平均でも $50.6 \mu\text{g m}^{-3}$ となって、いずれも環境基準 (光化学オキシダントは 1 時間値が 60 ppb 以下、PM2.5 は 1 日平均値が $35 \mu\text{g m}^{-3}$ 以下となっている。http://www.env.go.jp/kijyun/taiki.html, 2018.12.18 閲覧) を超えていました。なお、両モデルとも第12図と第13図で示すように、これら高濃度のオゾンとエアロゾルは再現できていません。この原因として排出量の不確かさやモデルの空間分解能の粗さなどが原因と考えられますが、健康などに大きな影響を及ぼす高濃度汚染大気の前予測精度を向上させる上でモデルと観測を含めたさらなる研究が必要です。

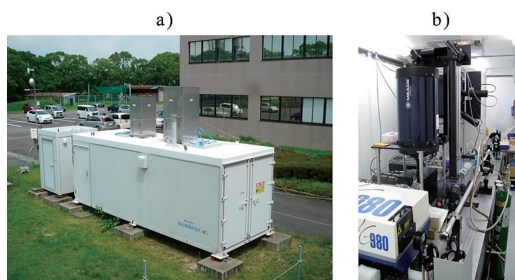
5. 狭帯域可変波長レーザーによる水蒸気観測と今後への期待

これまで述べてきたようにハートレー吸収帯を利用したオゾン DIAL では必ずしも可変波長で狭帯域のレーザーを必要としませんが、水蒸気の吸収線を利用した DIAL では水蒸気の吸収線幅が狭いこと、また、観測に最適の吸収線を選択するためには可変波長狭帯域のレーザーが必要です (Browell *et al.* 1981)。水蒸気の吸収線のスペクトル幅は地上付近では圧力幅により 10 pm 以上広がっていますが、高度 20 km 付近ではドップラー幅が圧力幅より広くなりスペクトル幅は 2 pm と狭くなります (内海ほか 1993)。したがって、水蒸気 DIAL に用いるレーザーのスペクトル幅は 1 pm 以下が望まれます。また、水蒸気の吸収線に 1 pm 以下で同調するための光音響 (PAS) セルなどを用いた同調技術が必要です (長澤ほか 1994)。

これらの基礎的な技術開発を踏まえ、気象研究所、東京都立大学 (現首都大学東京)、宇宙開発事業団 (現宇

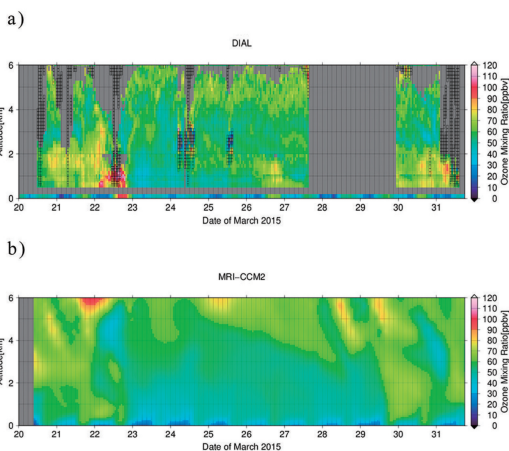
宙航空研究開発機構), 三菱電機は1995年に将来の衛星搭載に向けた水蒸気 DIAL の可能性についてのシミュレーションやハードの検討を行い(Nagasawa *et al.* 1995; Uchino *et al.* 1995b), それらの結果を基に, 水蒸気による吸収の強いものと弱いもの, それに吸収しない3波長のレーザーを1.2 ms 間隔で発振でき, それらのトリプルパルスを送信できるレーザーダイオード (LD) 励起 Nd:YLF レーザー (波長1053 nm, 平均出力50 W, 繰り返し率150 Hz) の SHG (30 W) で励起されたチタンサファイアレーザーの開発を行いました. PASセルを利用して水蒸気の吸収線に同調した単一モードの LD のレーザーをリング型共振器で構成されたチタンサファイアレーザーに注入同期して, 波長幅<0.1 pm, 波長安定度±0.06 pm 以下, 出力エネルギー45 mJ, パルス幅23 ns, 平均出力6.8 W が得られました(Yanagisawa *et al.* 1999). なお, 衛星搭載を考えてヒートパイプを通して伝導冷却された LD 励起 Nd:YLF レーザーの最大出力は72 W でした (Hirano *et al.* 2000).

このチタンサファイアレーザーと口径20 cm の望遠

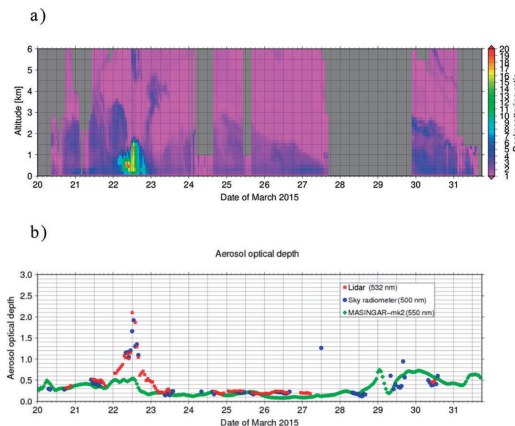


第11図 佐賀大学理工学部7号館の側に設置した GOSAT プロダクト検証用可搬型ライダーの (a) 外観と (b) 内部 (Uchino *et al.* 2017).

鏡, 検出器として APD を用いた航空機搭載水蒸気 DIAL を開発し観測を行ったところ名古屋大学の水蒸気ラマンライダーで観測した水蒸気分布と良い一致が見られました (Nagai *et al.* 1999; Sakai *et al.* 1997; 内野ほか 2009). 残念ながら, この航空機搭載水蒸気 DIAL による観測は長期室内実験などによる LD の劣化や予算の関係等で継続は困難でしたが, 当時世界に日本の高い DIAL 技術を示すことはできたのではないかと考えています. 一方, ドイツ航空宇宙センター (DLR) は LD 励起ヤグレーザーの SHG 励



第12図 (a) 2015年3月20~31日に可搬型ライダーで観測された高度0.57~6.0 km のオゾン高度分布, 灰色の部分は観測データがないか信号対雑音比から計算された測定誤差が10%より大きい部分を示す, 黒い長方形で囲まれた部分はエアロゾルや雲の影響を受けている部分を示す. 図中の一冊下のカラーバーは佐賀県環境センターが佐賀市高木町で測定したオキシダント (オゾン) 濃度の特別値を表す. (b) MRI-CCM2 で予測されたオゾン高度分布 (Uchino *et al.* 2017).



第13図 (a) 2015年3月20~31日に可搬型ライダーで観測されたエアロゾルの波長532 nm における散乱比の高度分布, 灰色は観測データがない部分を示す. (b) ライダーとスカイラジオメーターで観測された AOD と MASINGAR-mk2 で予測された AOD の時間変化, それぞれ波長が少し異なっていることに注意 (Uchino *et al.* 2017).

起光パラメトリック発振 (OPO) により波長935 nm 付近の水蒸気の吸収を利用した航空機搭載 DIAL で巻雲周辺の水蒸気測定などを行っています (Groß *et al.* 2014). DLR などの強みは何といっても航空機を所有していることです。

全球のエアロゾルや水蒸気などの観測は衛星搭載のライダーが必要です。日本では1990年代に衛星搭載ライダーの検討やライダー実証衛星 (MDS-2) の開発が進められていましたが、1999年の H-II ロケットの打ち上げの失敗の影響等を受け途中で開発中止となりました。なお、日本の衛星搭載ライダー計画関連資料については、レーザーセンシング学会のホームページ (<https://laser-sensing.jp/>, 2018.12.18閲覧) を参照して下さい。

一方、米国航空宇宙局 (NASA) とフランス国立宇宙研究センター (CNES) は2006年に CALIPSO (Winker *et al.* 2009) を打ち上げ現在も観測を続け多くの科学的成果を上げてきています。最近になって再び日本でも衛星搭載の植生ライダーや風ライダーなどの検討が行われています。これらの実現も含めて気象・環境計測における日本のライダーの益々の発展を期待したいと思います。

6. おわりに

ルビーライダーの開発・観測や地球物理の楽しさなどを指導して頂いた広野求和先生、藤原玄夫先生、色素レーザーやエキシマーレーザーの開発を丁寧に指導して頂いた前田三男先生、宮副 泰先生に深く感謝致します。九州大学大気物理研究室の沢田竜吉先生、松野太郎先生、瓜生道也先生には研究へのコメントや励ましのお言葉を頂きました。気象研究所の内藤恵吉部長にはライダーの新しい解析に関する情報提供や観測結果に対するコメントなどを頂きました。また、加藤進先生、上山 弘先生、廣田 勇先生、新田 尚先生、伊藤朋之先生、近藤 豊先生にはオゾンライダー観測などについての励ましの言葉などを頂きました。ここに厚く御礼申し上げます。

ルビーレーザーはパルスあたりの出力は大きいが繰り返しが遅いために、ライダーの送・受信光軸合わせには藤原玄夫先生や松尾 稔さんと苦労した覚えがあります (Hirono *et al.* 1972b)。エタロンを用いたルビーレーザー励起色素レーザーの狭帯域化は牧野行雄さんと一緒に行いました (Hirono *et al.* 1971)。色素レーザーやエキシマーレーザーの開発では、フラッシ

ュランプや電極などを作るため旋盤加工やネジ切りなどで工場によく通いました。エキシマーレーザーのステンレス電極面の型紙が間違っていたために一月に及ぶやすりかけが無駄になったことが思い出されます。

色素レーザーの開発では板部敏和さん、岡田龍雄さん、エキシマーレーザーの開発や観測では修士論文や卒業論文の研究を一緒に行った多くの大学院生や卒論生に、また成層圏オゾンの観測では柴田 隆さん、長澤親生さんらに協力して頂きました。

気象研究所におけるライダー観測は、高橋克己さん、田端 功さん、穂田 巖さん、岡田芳隆さん、甲斐憲次さん、永井智広さん、藤本敏文さん、廣田道夫さんらと行ってきました。Lauder でのライダー観測は Andrew Matthews さんと Ben Liley さんに、佐賀大学でのライダー観測は新井康平先生と奥村 浩先生に協力して頂きました。気象庁の綾里でのヤグライダーの立ち上げは、松原廣司さん、本田耕平さん、大野智生さん、青柳曉典さん、齋藤篤思さんらと行いました。このライダーは世界気象機関/全球大気監視 (WMO/GAW) 計画の中で世界最初のものでしたが、残念ながら観測は10年で終了することになりました。

NIES での GOSAT 検証のためのライダーの立ち上げ、観測、解析などについては森野 勇さん、永井智広さん、酒井 哲さん、泉 敏治さん、柴田 隆さん、笹野泰弘さん、横田達也さん、松永恒雄さん、吉田幸生さん、菊地信弘さん、大山博史さん、井上 誠さんらにご理解とご協力を頂きました。スカイラジオメーターのデータは山崎明宏さん、内山明博さんから提供して頂きました。科学技術振興調整費については板部敏和さん、笹野泰弘さん、浅井和弘さん、牧野行雄さん、野村保夫さんらと協力して獲得に努めました。ライダーの観測結果とモデルシミュレーションとの比較などでは、木田秀次さん、千葉 長さん、佐々木 徹さん、柴田清孝さん、秋吉英治さん、真木貴史さん、出牛 真さん、田中泰宙さん、弓本桂也さんらにお世話になりました。今回、大変微力ではありますが藤原賞を受賞する機会を得ましたのは、ここに記載できなかった他の多くの方々からのご協力もあったからこそこのことと深く感謝申し上げます。最後に、研究に大方の時間を費やすことを許してもらった家族に感謝します。

参考文献

Ancellet, G., A. Papayannis, J. Pelon and G. Mégie, 1989:

- DIAL tropospheric ozone measurement using a Nd:YAG laser and the Raman shifting technique. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **6**, 832-839.
- Ansmann, A., M. Riebesell and C. Weitkamp, 1990: Measurement of atmospheric aerosol extinction profiles with a Raman lidar. *Opt. Lett.*, **15**, 746-748.
- Browell, E. V., A. F. Carter and T. D. Wilkerson, 1981: Airborne differential absorption lidar system for water vapor investigations. *Opt. Eng.*, **20**, 84-90.
- Browell, E. V., A. F. Carter, S. T. Shipley, R. J. Allen, C. F. Butler, M. N. Mayo, J. H. Siviter, Jr. and W. M. Hall, 1983: NASA multipurpose airborne DIAL system and measurements of ozone and aerosol profiles. *Appl. Opt.*, **22**, 522-534.
- Deushi, M. and K. Shibata, 2011: Development of a Meteorological Research Institute Chemistry-Climate Model version 2 for the study of tropospheric and stratospheric chemistry. *Pap. Meteor. Geophys.*, **62**, 1-46.
- Fiocco, G. and G. Grams, 1964: Observations of the aerosol layer at 20 km by optical radar. *J. Atmos. Sci.*, **21**, 323-324.
- Gibson, A. J. and L. Thomas, 1975: Ultraviolet laser sounding of the troposphere and lower stratosphere. *Nature*, **256**, 561-563.
- Groß, S., M. Wirth, A. Schäfler, A. Fix, S. Kaufmann and C. Voigt, 2014: Potential of airborne lidar measurements for cirrus cloud studies. *Atmos. Meas. Tech.*, **7**, 2745-2755.
- Hirano, Y., T. Yanagisawa, S. Ueno, T. Tajime, O. Uchino, T. Nagai and C. Nagasawa, 2000: All-solid-state high-power conduction-cooled Nd:YLF rod laser. *Opt. Lett.*, **25**, 1168-1170.
- 広野求和, 1985: ライダーにより観測された大気中エアロゾルの変動と大気・海洋変動の関連—昭和59年度藤原賞受賞記念講演—. *天気*, **32**, 121-127.
- Hirono, M., O. Uchino and Y. Makino, 1971: Characteristics of tunable narrow-band and high power polymethine dye lasers. *Japan. J. Appl. Phys.*, **10**, 960-961.
- Hirono, M., M. Fujiwara, O. Uchino and T. Itabe, 1972a: Observations of aerosol layers in the upper atmosphere by laser radar. *Rep. Ionos. Space Res. Japan*, **26**, 237-244.
- Hirono, M., M. Fujiwara, O. Uchino and M. Matsuo, 1972b: Construction of the laser radar and measurements on the transmission of the atmosphere at the wavelength of the ruby laser in Fukuoka. *Mem. Fac. Sci. Kyushu Univ., Ser. B.*, **4**, 111-117.
- Jäger, H. and T. Deshler, 2003: Correction to "Lidar backscatter to extinction, mass and area conversions for stratospheric aerosols based on midlatitude balloonborne size distribution measurements". *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1382, doi:10.1029/2003GL017189.
- Kawamata, M., S. Yamada, T. Kudoh and K. Takano, 1992: Atmospheric temperature variation after the 1991 Mt. Pinatubo eruption. *J. Meteor. Soc. Japan*, **70**, 1161-1166.
- Kodera, K., 1994: Influence of volcanic eruptions on the troposphere through stratospheric dynamical processes in the northern hemisphere winter. *J. Geophys. Res.*, **99**, 1273-1282.
- Kondo, Y., Y. Zhao, O. Uchino, T. Nagai, T. Fujimoto, T. Itabe, K. Mizutani and T. Shibata, 1995: Stratospheric ozone changes at 43°N and 36°N over Japan between 1991 and 1994. *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 3223-3226.
- 前田三男, 内野 修, 板部敏和, 宮副 泰, 1973: 上層大気観測用可変波長色素レーザー, 九大工学集報, **46**, 371-376.
- Maeda, M., O. Uchino, T. Okada and Y. Miyazoe, 1975: Powerful narrow-band dye laser forced oscillator. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **14**, 1975-1980.
- 前田三男, 内野 修, 下村 修, 宮副 泰, 1981: KrFエキシマーレーザーによるCH₄とH₂の誘導ラマン散乱, 九大工学集報, **54**, 175-181.
- McDermid, I. S., S. M. Godin and T. D. Walsh, 1990: Lidar measurements of stratospheric ozone and inter-comparisons and validation. *Appl. Opt.*, **29**, 4914-4923.
- McGee, T. J., M. Gross, R. Ferrare, W. Heaps and U. Singh, 1993: Raman DIAL measurements of stratospheric ozone in the presence of volcanic aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 955-958.
- Mégie, G., J. Y. Allain, M. L. Chanin and J. E. Blamont, 1977: Vertical profile of stratospheric ozone by lidar sounding from the ground. *Nature*, **270**, 329-331.
- Molina, M. J. and F. S. Rowland, 1974: Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom-catalysed destruction of ozone. *Nature*, **249**, 810-812.
- Nagai, T., O. Uchino, T. Fujimoto, Y. Sai, K. Tamashiro, R. Nomura and T. Sunagawa, 1993: Lidar observation of the stratospheric aerosol layer over Okinawa, Japan, after the Mt. Pinatubo volcanic eruption. *J. Meteor. Soc. Japan*, **71**, 749-755.
- Nagai, T., O. Uchino, C. Nagasawa, T. Igarashi, T. Nakajima, Y. Hirano, S. Ueno and S. Wakabayashi, 1999: Development of the airborne water vapor differential absorption lidar (DIAL). *Proc. Int. Laser Sens-*

- ing Symp. '99, 20th Japan. Laser Sens. Symp., 211-212, Fukui, September 6-9, 1999.
- Nagasawa, C., M. Hirono and M. Fujiwara, 1980: A reliable efficient forced oscillator dye laser to measure the upper atmospheric sodium layer. *Japan. J. Appl. Phys.*, **19**, 143-147.
- 長澤親生, 阿保 真, 君山健二, 内野 修, 1994: PASセルを用いた準同時2波長水蒸気差分吸収ライダー。レーザー研究, **22**, 1000-1006.
- Nagasawa, C., M. Abo, T. Sugisaki and O. Uchino, 1995: Simulation for atmospheric water vapor measurements from spaceborne DIAL, *SPIE*, **2581**, 161-167.
- Nakane, H., Y. Sasano, S. Hayashida-Amano, N. Sugimoto, I. Matsui, A. Minato and M. P. McCormick, 1993: Comparison of ozone profiles obtained with NIES DIAL and SAGE II measurements. *J. Meteor. Soc. Japan*, **71**, 153-159.
- Nakazato, M., T. Nagai, T. Sakai and Y. Hirose, 2007: Tropospheric ozone differential-absorption lidar using stimulated Raman scattering in carbon dioxide. *Appl. Opt.*, **46**, 2269-2279.
- Ohyama, H., S. Kawakami, T. Tanaka, I. Morino, O. Uchino, M. Inoue, T. Sakai, T. Nagai, A. Yamazaki, A. Uchiyama, T. Fukamachi, M. Sakashita, T. Kawasaki, T. Akaho, K. Arai and H. Okumura, 2015: Observations of XCO₂ and XCH₄ with ground-based high-resolution FTS at Saga, Japan, and comparisons with GOSAT products. *Atmos. Meas. Tech.*, **8**, 5263-5276.
- Ohyama, H., S. Kawakami, O. Uchino, T. Sakai, I. Morino, T. Nagai, K. Shiomi, M. Sakashita, T. Akaho, H. Okumura and K. Arai, 2016: Seasonal variation of the O₃-CO correlation derived from remote sensing measurements over western Japan. *Atmos. Environ.*, **147**, 344-354.
- Pawson, S. and W. Steinbrecht (Lead Authors), A. J. Charlton-Perez, M. Fujiwara, A. Yu. Karpechko, I. Petropavlovskikh, J. Urban and M. Weber, 2014: Update on global ozone: Past, present, and future. Chapter 2 in *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014, Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 55*, World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland.
- Pelon, J., S. Godin and G. Mégie, 1986: Upper stratospheric (30-50 km) lidar observations of the ozone vertical distribution. *J. Geophys. Res.*, **91**, 8667-8671.
- Ridley, D. A., S. Solomon, J. E. Barnes, V. D. Burlakov, T. Deshler, S. I. Dolgii, A. B. Herber, T. Nagai, R. R. Neeley III, A. V. Nevzorov, C. Ritter, T. Sakai, B. D. Santer, M. Sato, A. Schmidt, O. Uchino and J. P. Vernier, 2014: Total volcanic stratospheric aerosol optical depths and implications for global climate change. *Geophys. Res. Lett.*, **41**, 7763-7769.
- Sakai, T., T. Shibata and Y. Iwasaka, 1997: Relative humidity, backscattering ratio and depolarization ratio as derived from Raman lidar observations. *J. Meteor. Soc. Japan*, **75**, 1179-1185.
- Sakai, T., O. Uchino, T. Nagai, B. Liley, I. Morino and T. Fujimoto, 2016: Long-term variation of stratospheric aerosols observed with lidars over Tsukuba, Japan, from 1982 and Lauder, New Zealand, from 1992 to 2015. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **121**, 10283-10293.
- Solomon, S., D. J. Ivi, D. Kinnison, M. J. Mills, R. R. Neely III and A. Schmidt, 2016: Emergence of healing in the Antarctic ozone layer. *Science*, **353**, 269-274.
- Steinbrecht, W. *et al.* 2017: An update on ozone profile trends for the period 2000 to 2016. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 10675-10690.
- Tanaka, T. Y., K. Orito, T. T. Sekiyama, K. Shibata, M. Chiba and H. Tanaka, 2003: MASINGAR, a global tropospheric aerosol chemical transport model coupled with MRI/JMA98 GCM: Model description. *Pap. Meteor. Geophys.*, **53**, 119-138.
- Uchino, O. and I. Tabata, 1991: Mobile lidar for simultaneous measurements of ozone, aerosols, and temperature in the stratosphere. *Appl. Opt.*, **30**, 2005-2012.
- Uchino, O., M. Maeda, J. Kohno, T. Shibata, C. Nagasawa and M. Hirono, 1978: Observation of stratospheric ozone layer by a XeCl laser radar. *Appl. Phys. Lett.*, **33**, 807-809.
- Uchino, O., M. Maeda and M. Hirono, 1979: Applications of excimer lasers to laser-radar observations of the upper atmosphere. *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-15**, 1094-1107.
- Uchino, O., M. Maeda, T. Shibata, M. Hirono and M. Fujiwara, 1980: Measurement of stratospheric vertical ozone distribution with a Xe-Cl lidar; estimated influence of aerosols. *Appl. Opt.*, **19**, 4175-4181.
- Uchino, O., M. Maeda, H. Yamamura and M. Hirono, 1983a: Observation of stratospheric vertical ozone distribution by a XeCl lidar. *J. Geophys. Res.*, **88**, 5273-5280.
- Uchino, O., M. Tokunaga, M. Maeda and Y. Miyazoe, 1983b: Differential-absorption-lidar measurement of tropospheric ozone with excimer-Raman hybrid laser. *Opt. Lett.*, **8**, 347-349.
- 内野 修, 田端 功, 甲斐憲次, 1987: ライダー後方散乱

- 信号に与えるミスアライメントの影響. 気象研究所研究報告, **38**, 237-246.
- Uchino, O., I. Tabata, K. Kai and I. Akita, 1988: Five-year lidar observational results and effects of El Chichon particles on Umkehr ozone data. *J. Meteor. Soc. Japan*, **66**, 635-643.
- Uchino, O. *et al.*, 1993: Observation of the Pinatubo volcanic cloud by lidar network in Japan. *J. Meteor. Soc. Japan*, **71**, 285-295.
- Uchino, O., T. Nagai, T. Fujimoto, W. A. Matthews and J. Orange, 1995a: Extensive lidar observations of the Pinatubo aerosol layers at Tsukuba (36.1°N), Naha (26.2°N), Japan and Lauder (45°S), New Zealand. *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 57-60.
- Uchino, O., T. Nagai, T. Fujimoto, C. Nagasawa, M. Abo, T. Moriyama, T. Nakajima, N. Murate, K. Tatsumi and Y. Hirano, 1995b: Diode-pumped solid state laser for spaceborne water vapor DIAL. *SPIE*, **2581**, 154-160.
- 内野 修, 永井智広, 長澤親生, 阿保 真, 2009: 衛星搭載を目指した日本の水蒸気 DIAL はどこまで到達していたのか? 第13回大気ライダー観測研究会講演集, 47-50.
- Uchino, O., T. Sakai, T. Nagai, K. Nakamae, I. Morino, K. Arai, H. Okumura, S. Takubo, T. Kawasaki, Y. Mano, T. Matsunaga and T. Yokota, 2012a: On recent (2008-2012) stratospheric aerosols observed by lidar over Japan. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 11975-11984.
- Uchino, O., N. Kikuchi, T. Sakai, I. Morino, Y. Yoshida, T. Nagai, A. Shimizu, T. Shibata, A. Yamazaki, A. Uchiyama, N. Kikuchi, S. Oshchepkov, A. Bril and T. Yokota, 2012b: Influence of aerosols and thin cirrus clouds on the GOSAT-observed CO₂: a case study over Tsukuba. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 3393-3404.
- Uchino, O., T. Sakai, T. Nagai, I. Morino, T. Maki, M. Deushi, K. Shibata, M. Kajino, T. Kawasaki, T. Akaho, S. Takubo, H. Okumura, K. Arai, M. Nakazato, T. Matsunaga, T. Yokota, S. Kawakami, K. Kita and Y. Sasano, 2014: DIAL measurement of lower tropospheric ozone over Saga (33.24°N, 130.29°E), Japan, and comparison with a chemistry-climate model. *Atmos. Meas. Tech.*, **7**, 1385-1394.
- Uchino, O., T. Sakai, T. Izumi, T. Nagai, I. Morino, A. Yamazaki, M. Deushi, K. Yumimoto, T. Maki, T. Y. Tanaka, T. Akaho, H. Okumura, K. Arai, T. Nakatsuru, T. Matsunaga and T. Yokota, 2017: Lidar detection of high concentrations of ozone and aerosol transported from northeastern Asia over Saga, Japan. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 1865-1879.
- 内海通弘, 前田三男, 村岡克紀, 内野 修, 1993: アレキサンドライトライダーによる大気中水蒸気の測定. レーザー研究, **21**, 1031-1039.
- Voltaire, A. V., I. Morino, O. Uchino, A. Hori, M. Kiel, B. Bukosa, N. M. Deutscher, T. Sakai, T. Nagai, G. Bugtasa, T. Izumi, Y. Yoshida and D. W. T. Griffith, 2017: TCCON Philippines: first measurement results, satellite data and model comparisons in southeast Asia. *Remote Sens.*, **9**, doi:10.3390/rs9121228.
- Winker, D. M., M. A. Vaughan, A. Omar, Y. Hu, K. A. Powell, Z. Liu, W. H. Hunt and S. A. Young, 2009: Overview of the CALIPSO mission and CALIOP data processing algorithms. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **26**, 2310-2323.
- Wu, P.-M., K. Okada, T. Tanaka, T. Sasaki, T. Nagai, T. Fujimoto and O. Uchino, 1994: Balloon observation of stratospheric aerosols over Tsukuba, Japan Two years after the Pinatubo volcanic eruption. *J. Meteor. Soc. Japan*, **72**, 475-480.
- Yanagisawa, T., M. Imaki, Y. Hirano, O. Uchino, T. Nagai and C. Nagasawa, 1999: Development of a three-wavelengths switchable Ti:sapphire laser. *Proc. Int. Laser Sens. Symp. '99*, 20th Japan. Laser Sens. Symp., 191-194, Fukui, September 6-9, 1999.
- Yoshida, Y., Y. Ota, N. Eguchi, N. Kikuchi, K. Nobuta, H. Tran, I. Morino and T. Yokota, 2011: Retrieval algorithm for CO₂ and CH₄ column abundances from short-wavelength infrared spectral observations by the Greenhouse gases observing satellite. *Atmos. Meas. Tech.*, **4**, 717-734.

Lidar Developments and Applications to Observational Studies of Atmospheric Constituents

Osamu UCHINO*

* *Satellite Observation Center, National Institute for Environmental Studies,
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan.*

(Received 31 August 2018; Accepted 18 December 2018)
