

## 研究論文 4

10.4, 11.4

差分吸収レーザーレーダーによる  
排煙流中のNO<sub>2</sub>濃度分布の測定

杉本伸夫・竹内延夫・奥田典夫

国立公害研究所 ▼305 茨城県筑波郡谷田部町

(1981年2月16日 受理)

Remote Measurement of NO<sub>2</sub> Profile in a Stack  
Plume by a Differential Absorption LidarNobuo SUGIMOTO, Nobuo TAKEUCHI  
and Michio OKUDAThe National Institute for Environmental Studies,  
Yatabe-machi, Tsukuba-gun, Ibaraki 305

(Received February 16, 1981)

A DIAL (Differential Absorption Lidar) system for NO<sub>2</sub> monitoring was developed using a flash-lamp pumped dye laser. It was used to measure NO<sub>2</sub> concentration in a stack plume. Two wavelengths, resonant (463 nm) and off-resonant (466 nm) to the NO<sub>2</sub> absorption, were switched every two seconds in the measurement; this gave an accuracy of 0.03 ppm for NO<sub>2</sub> concentration with 120 m range resolution up to 500 m by integrating signals for 4 minutes. The sources of measurement error were investigated and the main source of error was shown to be the fluctuation of atmospheric aerosol concentration. It was pointed out that simultaneous measurement at two wavelengths should improve the accuracy of the measurement.

## 1. はじめに

大気汚染成分の遠隔計測の手法としては、汚染成分による吸収、蛍光、ラマン散乱などを利用した、いくつかの手法が考えられる。これらのうち、対流圏におけるNO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>などの微量分子の遠隔計測に対しては、ラマン散乱は散乱断面積が小さすぎ、蛍光法では大気によるquenchingがあるため、吸収を利用した手法が最も有効であると考えられる。本論文で報告する差分吸収レーザーレーダー(Differential Absorption Lidar, 略してDIAL)は、レーザー光の、大気中エアロゾルによる後方散乱を利用し、光路内の気体分子による吸収を測定する手法で、距離分解能をもって気体濃度分布を得ることができる。差分吸収の名が示す通り、DIAL測定では気

体分子の吸収曲線の極大および極小に同調した2波長のレーザー光を用い、2波長における信号の比より気体濃度が計算される。

国立公害研究所においては、汚染気体のうち特に重要なNO<sub>2</sub>について、フラッシュランプ励起色素レーザーを用いたDIALシステムの開発を行ってきた。NO<sub>2</sub>はそれ自体、呼吸機能へ障害を及ぼす有害物質であるほか、光化学スモッグの原因物質のひとつとして、その動態を把握することが重要な課題となっている。NO<sub>2</sub>の発生量、移流拡散、化学反応等の動態を解明するうえで、NO<sub>2</sub>の空間分布を測定することは不可欠であるが、従来のサンプリング測定と比べて、DIAL等の遠隔計測の手法は空間的に連続した濃度分布データが得られる点で優れており、その実用化が期待されている。

本論文では、排煙流あるいは道路付近など比較的高濃度の地域における NO<sub>2</sub> 濃度分布の測定を目的として開発した DIAL システムについて述べ、煙突からの排煙流を対象に行なった測定実験の結果を報告する。このシステムはパルス当たりのエネルギーの大きい同軸型フラッシュランプ励起色素レーザーを光源として、可視域の NO<sub>2</sub> の吸収の極大 (463.1 nm) および近接する極小 (465.8 nm) の 2 波長を用いて DIAL 測定を行なう。この実験では、4 分間の積算により、距離分解能 120 m で、500 m までの距離において 0.03 ppm 以上の精度が得られた。この事例でも DIAL が高濃度地域における NO<sub>2</sub> 濃度分布の測定に対して十分な性能をもつことが示された。

2. NO<sub>2</sub> 測定用 DIAL システム

2.1 測定原理

DIAL は 1964 年に Schotland<sup>1,2)</sup> により、ルビーレーザー (λ=694.3 nm) を用いて大気中の水蒸気の鉛直分布を測定する手法として提案された。その後、色素レーザー、光パラメトリック発振器、TEA-CO<sub>2</sub> レーザー等の光源の開発に伴って、H<sub>2</sub>O 以外の気体成分についても数多くの DIAL 実験が行なわれてきた<sup>3-14)</sup> (NO<sub>2</sub><sup>3-7)</sup>, SO<sub>2</sub><sup>8,9,13)</sup>, O<sub>3</sub><sup>8,14)</sup>, H<sub>2</sub>O<sup>11,12)</sup>, その他<sup>10)</sup>。

DIAL による NO<sub>2</sub> の最初の測定は、1974 年に Rothe<sup>5,6)</sup> および Grant<sup>7)</sup> によって行なわれた。Rothe らは N<sub>2</sub> レーザー励起色素レーザーを用いて、約 700 m 離れた化学工場上空の NO<sub>2</sub> 濃度分布の測定を行ない、1 方向について 2 時間の積算により、0.2 ppm の精度を得た。また Grant らは、試料セルを用いたモデル実験を行なった。本研究はこれらの延長上に位置するもので、同一の原理に基づいている。本システムでは、出力の大きい色素レーザーを用いたこと、信号処理系が改善されたこと、およびコンピュータ制御によりデータ収集を行なうことにより、以前の実験に比べ測定精度が向上している。

DIAL はミューン散乱レーザーレーダーと気体分子による吸収を組み合わせた手法で、気体濃度分布は気体分子の吸収の極大および極小に対応する 2 波長におけるレーザーレーダー受信信号の比より計算される。距離 R に対応するレーザーレーダー受信信号 P<sub>i</sub>(R) は次式で表わされる。

$$P_i(R) = Y(R) \eta P_0 d A \beta_i R^{-2} \exp \left\{ -2 \int_0^R [\alpha_i + \sigma_i N(r)] dr \right\} \quad (1)$$

ここに、i は吸収の極大、極小の 2 波長 (λ<sub>on</sub>, λ<sub>off</sub>) を表わす。Y(R) はレーザー出力光と受光望遠鏡の視野の

重なりを表わす関数、η は光学系の効率、P<sub>0</sub> はレーザー出力光強度、d はレーザーパルス空間長の半分 (τ をパルス時間幅とすると d = cτ/2)、A は受光望遠鏡の面積である。また β はエアロゾルのミューン体積後方散乱係数、α はエアロゾルによる減衰係数、σ は気体分子の吸収断面積、N(R) は気体濃度である。

気体濃度 N(R) は、距離分解能を δR とする場合、(1) 式より次のように求められる<sup>15,16)</sup>。

$$N(R) = \frac{1}{2\sigma_a \delta R} \left\{ \ln \left[ \frac{P_{on}(R)}{P_{on}(R+\delta R)} \right] - \ln \left[ \frac{P_{off}(R)}{P_{off}(R+\delta R)} \right] + B + T \right\} \quad (2)$$

ここに、 $B = \ln \left[ \frac{\beta_{on}(R+\delta R)}{\beta_{on}(R)} \right] - \ln \left[ \frac{\beta_{off}(R+\delta R)}{\beta_{off}(R)} \right]$

$$T = -2(\alpha_{on} - \alpha_{off}) \delta R$$

また、σ<sub>a</sub> = σ<sub>on</sub> - σ<sub>off</sub> とおいた。λ<sub>on</sub>, λ<sub>off</sub> は近接する 2 波長であるので、β<sub>on</sub> = β<sub>off</sub>, α<sub>on</sub> = α<sub>off</sub> とみなせるとすると、B = T = 0 である。以上においては、出力レーザーパルス幅が距離分解能に比べて十分狭い場合を考えている。距離分解能はレーザーパルス幅によって制限され、ディコンボリューション演算を行なう以外にはパルス空間長の半分より高い分解能を得ることはできない。

一方、DIAL 測定の誤差 ε は、測定された濃度の標準偏差を δN(R) とし、ε = δN(R)/N(R) と定義される。測定の SN 比は 1/ε で表わされる。(2) 式を用いると、ε<sup>2</sup> は、P<sub>on</sub> と P<sub>off</sub> の相関の項を省略して次のように書ける。

$$\epsilon^2 = \left[ \frac{\delta N(R)}{N(R)} \right]^2 = \frac{1}{M} \frac{1}{4\sigma_a^2 \delta R^2 N(R)^2} \left[ \sum_{i=on,off} \left\{ \left( \frac{\delta P_i(R)}{P_i(R)} \right)^2 + \left( \frac{\delta P_i(R+\delta R)}{P_i(R+\delta R)} \right)^2 \right\} \right] \quad (3)$$

ここに、M は積算回数である。δP<sub>i</sub>/P<sub>i</sub> は光電子増倍管の雑音のみを考慮する場合には次式で表わされる。

$$\frac{\delta P_i^2}{P_i^2} = \frac{(h\nu_i/\eta_Q T)(P_i + P_B) + P_D^2}{P_i^2} \quad (4)$$

ここに、1/T は信号処理系のバンド幅 (T = 2δR/c), η<sub>Q</sub> は光電子増倍管の量子効率である。P<sub>B</sub> は背景光強度、P<sub>D</sub> は暗電流による雑音に相当する光強度である。P<sub>D</sub> の項は通常非常に小さい。今、P<sub>D</sub> および P<sub>B</sub> の項が無視できるとすると、DIAL の SN 比は (3), (4) 式より S/N ∝ M<sup>1/2</sup> δR<sup>3/2</sup> N(R) P<sub>0</sub><sup>1/2</sup> となり、レーザー出力光強度の 1/2 乗、距離分解能の 3/2 乗に比例する。

2.2 DIAL システムの概要

DIAL システムはレーザー送信系、受光系、信号処理系、制御およびデータ処理系によって構成されている。システムのブロック図を Fig. 1 に、仕様を Table 1 に示す。

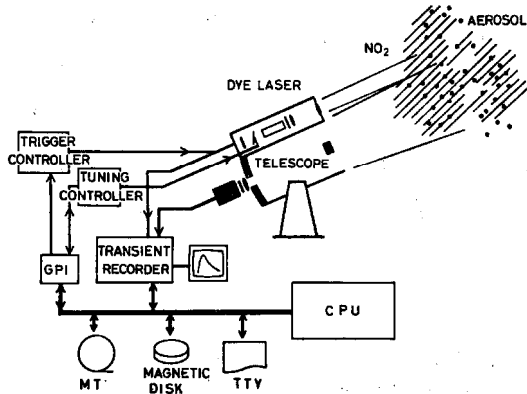


Fig. 1 Block diagram of the DIAL system.

レーザー光源としては同軸型フラッシュランプ励起色素レーザーを用い、波長の選択はレーザー共振器中においたエタロンの角度をステップモーターで調節することにより行なう。この DIAL システムでは、2 波長の組として  $\lambda_{on}=463.1 \text{ nm}$ ,  $\lambda_{off}=465.8 \text{ nm}$  を用いて測定を行なう。この 2 波長における NO<sub>2</sub> の吸収断面積はそれぞれ、 $\sigma_{on}=4.7 \times 10^{-23} \text{ m}^2$ ,  $\sigma_{off}=2.3 \times 10^{-23} \text{ m}^2$  である。レーザー波長の校正は NO<sub>2</sub> を封入したセルによる吸収を測定して行なう。Fig. 2 にレーザー波長を変えて測定したセルの透過特性を、分光器により測定した透過曲線と比較したものを示す。測定された透過曲線は互によく一致している。Fig. 2 より吸収の極大および極小の 2 波長に対応するステップモーターのアドレスを求め、これをミニコンピュータに記憶させることにより波長の設定を行なう。レーザー繰り返し数は 0.5 pps で、1 ショットごと、すなわち 2 秒ごとに波長を切り換えて

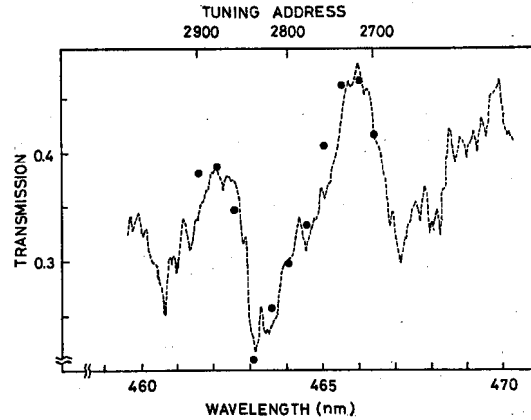


Fig. 2 A transmission profile of NO<sub>2</sub> (8 Torr, 10 cm in length in dry nitrogen ambient). The dashed line shows a transmission profile measured by a monochromator (resolution: 0.1 nm).

測定を行なう。

受光系は市販の 15 cm ニュートン型の望遠鏡を用い、上記の 2 波長を透過する波長幅  $\sim 10 \text{ nm}$  の干渉フィルタを使用した。

信号処理にはトランジェントレコーダ(岩通 DM 901)を用い、ゲートタイム 10 ns, 1024 セグメントで測定を行なった。

DIAL システムはミニコンピュータ (NOVA-02) を用いて制御され、レーザーの発射、レーザー波長の切り換え、トランジェントレコーダのパラメータ設定、データ取り込み、データの磁気テープへの記録が自動的に行なわれる。磁気テープに記録されたデータは測定終了

Table 1 Specification of the DIAL system.

Transmitter	Flashlamp-pumped dye laser	
	(NEC SL 269)	
	Pulse energy	100 mJ
	Pulse duration	600 ns
	Repetition	0.5 pps
	Wavelength tuning	Etalon
	Dye	CIH( $1.5 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$ )
	Wavelength	$\lambda_{on} 463.1 \text{ nm}$
		$\lambda_{off} 465.8 \text{ nm}$
Receiver	Telescope	0.15 m $\phi$ Newtonian
	Photomultiplier	HTV R 376
	Transient recorder	Clock rate 10 ns
	(Iwatsu DM 901)	Accuracy 8 bit
		Memory 1024 bytes/ch
Minicomputer	NOVA-02	

後、ミニコンピュータにより処理され、NO<sub>2</sub> 濃度分布が計算される。

以上に述べたように、このシステムは1ショット当たりのエネルギーの大きいレーザーを用いていること、レーザー波長を1ショットごとに切り換えていること、およびミニコンピュータを用いて測定の制御、測定データの処理を行なっている点に特徴をもつ。

### 3. DIAL による排煙の測定

#### 3.1 測定方法

前節に述べた DIAL システムによる測定実験を、国立公害研究所エネルギーセンターの煙突および焼却炉煙突からの排煙を対象に行なった。Fig. 3 は実験状況を示す地図である。A は研究本館屋上に置いた DIAL システム、B はエネルギーセンター、C は焼却炉煙突である。A より B 上空を通過する仰角 5° の直線上の NO<sub>2</sub> 濃度分布を測定した。

エネルギーセンターの排煙は排出ガス量 10000 Nm<sup>3</sup>/h で NO<sub>x</sub> は 100 ppm 含まれている。また、ばいじんは 0.006 g/Nm<sup>3</sup> と少なく、排煙は肉眼では見えない。一方、焼却炉は排出ガス量 4600 Nm<sup>3</sup>/h で NO<sub>x</sub> を 40 ppm 含む。ばいじんは 0.03 g/Nm<sup>3</sup> 含まれ、排煙は白く見える。測定時は双方とも運転中であり、エネルギーセンターボイラーは数分ごとの断続運転であった。また、天候は曇りで風はほとんどなかった。

#### 3.2 測定結果

測定された2波長における受信信号の比  $P_{on}(R)/P_{off}(R)$  および(2)式より算出された濃度分布  $N(R)$  を Fig. 4 に示す。

レーザーレーダー受信信号はゲートタイム 10 ns (1.5 m に相当) で取得し、平滑化処理を行なった後、(2)式で、 $\theta R=120$  m とおいて濃度を計算した。すなわち、Fig. 4 にプロットされた濃度は各距離について、その点を中心とする 120 m の区間の平均濃度を表わしてい

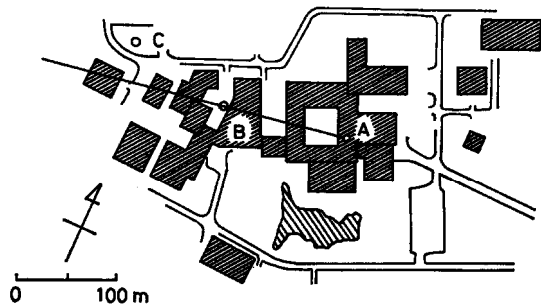


Fig. 3 Configuration of a DIAL experiment. A: DIAL system, B: stack at the energy center, C: stack at the incinerator.

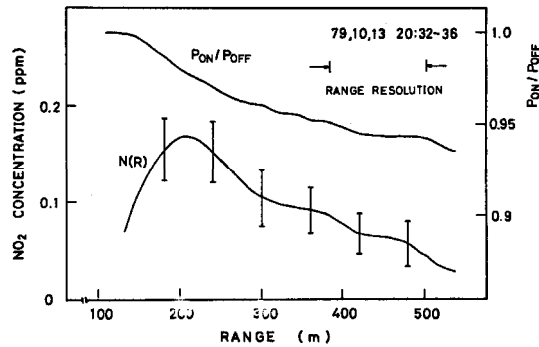


Fig. 4 Upper trace; ratio of received signal intensities at two wavelengths after 60 integrations. Lower trace; NO<sub>2</sub> concentration profile obtained from the upper profile.

る。濃度分布は排煙の近くでピークを示しており、ピーク値は 0.17 ppm であった。Fig. 4 は 60 データすなわち 4 分間の積算を行なったもので、測定誤差は 500 m までの距離で 0.03 ppm 以内であった。一方、このシステムに対する誤差の理論値は、光電子増倍管のショットノイズのみを考慮する場合、500 m の距離において、0.004 ppm である。この計算においては、視程を 10 km と仮定し、Table 1 に示したパラメータを用いた。また、受光系の効率  $\eta=0.6$ 、光電子増倍管の量子効率  $\eta_q=0.1$  とした。測定誤差が理論値より大きい原因は、エアロゾル体積後方散乱係数  $\beta$  の時間変化のためであると考えられるが、これについては次項で考察する。

Fig. 5 は NO<sub>2</sub> 濃度の一次元分布の時間変化を示したもので、ラインプリンタの重ね打ちにより、濃度を 10 段階で濃淡表示している。Fig. 5 において、100 m より近くではレーザー出力光線と受光望遠鏡の視野の重なりが小さく、SN 比が悪いため表示から除いてある。Fig. 5 中の最も濃い表示での NO<sub>2</sub> 濃度は 0.2 ppm である。Fig. 5 において、ボイラーの断続運転の影響によると思われる濃度分布の変化が見られる。

Fig. 6 は  $\lambda_{off}$  の受信信号より求めたエアロゾル分布の時間変化である。視野の重なり関数が不明であるためエアロゾル濃度そのものではなく、各距離における時間平均濃度からの差を平均濃度で正規化した量に相当する  $\{P(R,t)-\bar{P}(R)\}/\bar{P}(R)$  を表示した。Fig. 6 を Fig. 5 と比較することにより、NO<sub>2</sub> 分布とエアロゾル分布の相関を調べることが可能である。DIAL 測定では同時にエアロゾル分布を得られるため、DIAL を用いた汚染質とエアロゾルの相関の研究は、今後の成果が期待されるテーマのひとつである。

#### 3.3 測定誤差の検討

前項で述べたように、測定された NO<sub>2</sub> 濃度の誤差は

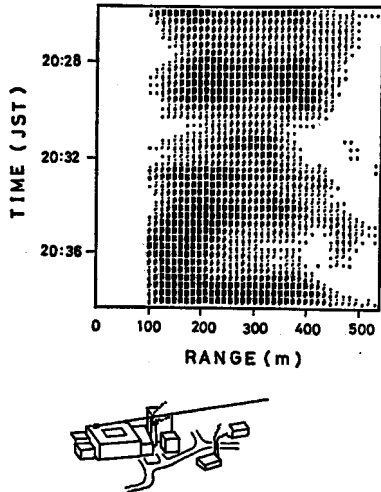


Fig. 5 Temporal profile of a line-of-sight NO<sub>2</sub> concentration. Concentration was exhibited by line-printer overprinting. The darkest region corresponds to 0.2 ppm.

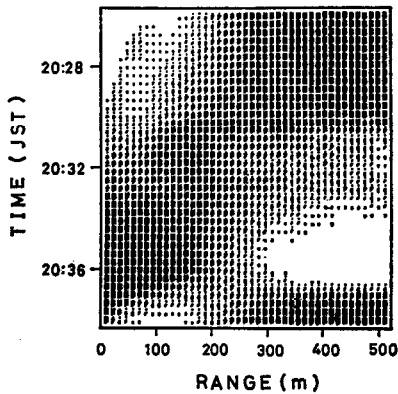


Fig. 6 Temporal profile of the aerosol concentration. Deviation from the mean value of aerosol concentration at each distance,  $\{P(R, t) - \bar{P}(R)\} / \bar{P}(R)$ , was shown.

光電子増倍管の雑音のみを考慮した理論値より約1桁大きい。誤差の原因として考えられるものは、光電子増倍管の雑音のほかに、電気的誘導雑音、レーザー出力光強度の変動、エアロゾル体積後方散乱係数の時間変化、AD変換による量子化雑音等がある。また、NO<sub>2</sub>濃度そのものの時間変化も誤差の中に含まれている。これらのうち、電気的誘導雑音は遮蔽を厳重に行なうことにより、問題にならない程度に抑えられている。また、レーザー出力光強度の変動は(2)式の分子、分母で打ち消される。

測定データより  $(\delta P(R))/P(R)$  を見積もるために、 $F(R) = P_{\text{off}}(R + \delta R) / P_{\text{off}}(R)$  を定義し、その標準偏差を

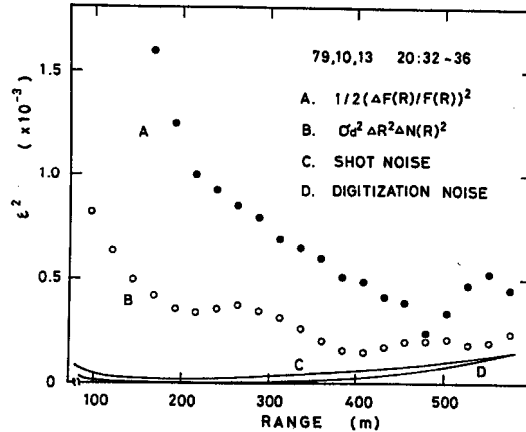


Fig. 7 Estimation of individual errors. A and B are errors  $1/2(\delta F(R)/F(R))^2$  and  $\sigma_a^2 \Delta R^2 \Delta N(R)^2$ , respectively, derived from the measurement. C and D are for shot noise and digitization noise, respectively. The evidence of atmospheric aerosol concentration fluctuation as the main error source was also supported by the fact that large fluctuation existed in the vicinity of the stack exit.

計算して Fig. 7 の A に示した。  $P(R)$  と  $P(R + \delta R)$  の相関の項を無視すると、

$$\left(\frac{\delta F}{F}\right)^2 \approx \left(\frac{\delta P(R)}{P(R)}\right)^2 + \left(\frac{\delta P(R + \delta R)}{P(R + \delta R)}\right)^2$$

と書けるので、Fig. 7 には  $1/2(\delta F/F)^2 \approx (\delta P/P)^2$  をプロットした。

一方、 $(\delta P/P)^2$  は誤差の原因として、ショットノイズ、量子化雑音、エアロゾル体積後方散乱係数  $\beta$  の変動を考えると

$$\left(\frac{\delta P}{P}\right)^2 \approx \frac{h\nu}{\eta_q T P} + \frac{\text{const}}{P^2} + \left(\frac{\delta \beta}{\beta}\right)^2$$

と表わされる。このうち、上式の第1項のショットノイズおよび第2項の量子化雑音について、 $P(R)$  の測定値を用いて見積もった値を Fig. 7 の C, D に示す。

Fig. 7 より  $(\delta P/P)^2$  に占めるショットノイズ、量子化雑音は小さく、 $(\delta \beta/\beta)^2$  がほとんどであると考えられることができる。 $\delta \beta/\beta$  はエアロゾル濃度すなわち  $\beta$  の大きさに依存していると考えられ、Fig. 7 においても  $\beta$  の大きい煙突付近で、 $1/2(\delta F/F)^2$  が大きくなっている。

次に(2)式を用いて計算された  $N(R)$  の標準偏差を Fig. 7 の B に示した。 $(\delta P/P)^2$  と比較するために(3)式の [ ] 内の  $1/4$  に相当する量  $\sigma_a^2 \delta R^2 \delta N(R)^2$  をプロットした。この量は、 $\beta_{\text{on}}(R)$  と  $\beta_{\text{off}}(R)$  の間に相関がなければ  $1/2(\delta F/F)^2$  と等しい値をもつ。この測定では、 $P_{\text{on}}(R), P_{\text{off}}(R)$  は2秒間隔で測定されているが、

Fig. 6 にも見られるような長周期のエアロゾル変化による相関があるため、(2)式中で  $\beta_{on}(R), \beta_{off}(R)$  の変化がある程度打ち消されて、Fig. 7 の B は  $1/2(\delta F/F)^2$  より小さくなっている。しかし、ショットノイズおよび量子化雑音のみによる誤差よりはかなり大きく、 $\beta$  の変動の影響を示している。DIAL 測定において  $\beta$  の変動による誤差を除くためには、(2)式中で  $\beta_{on}(R), \beta_{off}(R)$  の変化が完全に打ち消されるように、2 波長を同時に測定するか、 $\beta$  の変化が無視できる時間内に 2 波長を切り換えて測定する必要がある。

#### 4. 結 論

以上に報告した DIAL 実験により、DIAL が排煙流など、高濃度の領域における  $\text{NO}_2$  濃度分布測定に対して十分な測定感度をもつことが示された。測定精度をさらに向上させるためにはレーザーの 2 波長同時発振化を行ない、2 波長を同時に測定することが必要である。これは、このシステムにおいては、同軸型フラッシュランプ中に 2 本の色素セルを通し、二つの独立な共振器を構成することにより達成される。これにより、測定誤差の主な原因である波長切り換えの間のエアロゾル変化の影響を除くことができる。

DIAL を実用的なものとするためには、このような改良を行なうとともに、システムを車載型とすること、さらに、工場排煙あるいは道路周辺などを対象に、DIAL 測定とサンプリング測定を同時に行ない、データの比較校正を行なうことが必要である。

DIAL の実用化により、各種の測定実験への DIAL の応用が期待される。 $\text{NO}_2$  濃度分布とエアロゾル分布の相関の研究をはじめ、DIAL による排煙流中の  $\text{NO}_2$  濃度の測定とミュー散乱レーザーレーダーによる排煙流の断面および流速の測定<sup>17,18)</sup>を同時に行なうことにより、排煙中の  $\text{NO}$  の  $\text{NO}_2$  への反応の追跡、 $\text{NO}_2$  排出量のモニターを行なうことも可能と考えられる。

#### 5. ま と め

フラッシュランプ励起色素レーザーを用いた  $\text{NO}_2$  測定用 DIAL システムの開発を行なった。可視域の  $\text{NO}_2$  の吸収の極大および極小の 2 波長 (463.1, 465.8 nm) と同調したレーザー光を 2 秒ごとに交互に発射し、DIAL 測定を行なった。排煙を対象とした実験の結果、4 分間の積算により、距離分解能 120 m で、500 m までの距離において 0.03 ppm 以上の精度が得られた。こ

れは、発生源付近の  $\text{NO}_2$  分布の測定には十分な精度である。また、誤差の考察の結果、測定誤差の主な原因はエアロゾル濃度の時間変化によるもので、2 波長同時測定により、測定精度をさらに改善できる可能性が示された。

#### 文 献

- 1) R. M. Schotland: *Proc. 3rd Symp. Remote Sensing of the Environment, Univ. of Michigan, Ann Arbor, 1964*, p. 215.
- 2) R. M. Schotland: *Proc. 4th Symp. Remote Sensing of the Environment, Univ. of Michigan, Ann Arbor, 1966*, p. 273.
- 3) T. Igarashi: *Proc. 5th Conf. Laser Radar Studies of the Atmosphere, Williamsburg, 1973*, p. 57.
- 4) H. Inomata and T. Igarashi: *Jpn. J. Appl. Phys.* **14** (1975) 1751.
- 5) K. W. Rothe, U. Brinkmann and H. Walther: *Appl. Phys.* **3** (1974) 115.
- 6) K. W. Rothe, U. Brinkmann and H. Walther: *Appl. Phys.* **4** (1974) 181.
- 7) W. B. Grant, R. D. Hake, Jr., E. M. Liston, R. C. Robbins and E. K. Proctor, Jr.: *Appl. Phys. Lett.* **24** (1974) 550.
- 8) W. B. Grant and R. D. Hake, Jr.: *J. Appl. Phys.* **46** (1975) 3019.
- 9) J. M. Hoell, W. R. Wade and R. T. Thompson: *Int. Conf. Environmental Sensing and Assessment, Las Vegas, 1975*, Paper 10-6.
- 10) E. R. Murray, J. E. van der Laan and J. G. Hawley: *Appl. Opt.* **15** (1976) 3140.
- 11) E. R. Murray, R. D. Hake, J. E. van der Laan and J. G. Hawley: *Appl. Phys. Lett.* **28** (1976) 542.
- 12) E. V. Browell, T. D. Wilkerson and T. J. McIlrath: *Appl. Opt.* **18** (1979) 3474.
- 13) R. S. Adrain, D. J. Brassington, S. Sutton and R. H. Valey: *Opt. & Quantum Electron.* **11** (1979) 253.
- 14) K. Asai, T. Itabe and T. Igarashi: *Appl. Phys. Lett.* **35** (1979) 60.
- 15) R. M. Schotland: *J. Appl. Meteor.* **13** (1974) 71.
- 16) N. Takeuchi, H. Shimizu and M. Okuda: *Appl. Opt.* **17** (1976) 2734.
- 17) H. Shimizu, Y. Sasano, N. Takeuchi, O. Matsudo and M. Okuda: *Opt. & Quantum Electron.* **12** (1980) 159.
- 18) 清水 浩, 笹野泰弘, 安岡善文, 植田洋匡, 竹内延夫, 奥田典夫: *応用物理* **50** (1981) 613.