

共鳴散乱観測用色素レーザーの開発*

藪崎 努**・北野正雄**・小川 徹**

Development of Dye Laser System for Resonance Scattering Experiments

By

Tsutomu YABUZAKI, Masao KITANO, and Toru OGAWA

1. まえがき

共鳴散乱はその散乱断面積が極めて大きく、大気中に微量存在する原子、分子、イオン、基などを高感度で検出するのに役立つ。また特定の励起状態からの遷移を利用すれば、その励起状態にある原子の数を測定することも可能である。

色素レーザーを用いたレーザーレーダによる超高層大気中のナトリウム層 (10^2-10^4 atoms/cm³) の観測は共鳴散乱法の代表的な例である [1]、また最近 Fairbank ら [2] は色素レーザーを用いた共鳴散乱法によりナトリウム蒸気の密度を 10^2 atoms/cm³ 程度まで絶対測定できることを報告している。この 10^2 atoms/cm³ という密度は観測している領域の体積とレーザー光に共鳴する速度成分をもつ原子の割合を考慮すると 1/15 個の原子からの散乱を見ていることに相当する。

近年色素レーザーの発達により、より広範囲の波長域でコヒーレントな光が得られるようになったため、共鳴散乱法による多くの物質の検出が可能になりつつある。従って色素レーザーを飛行体に搭載し、共鳴散乱を用いた観測を行えば超高層の微量成分を非常に高感度で測定できるものと期待される。ここで用いられる色素レーザーは次の条件を満たすものでなければならない。①小型軽量であること、②消費電力が小さいこと、③他の測定系に雑音妨害を与えないこと、④機械的な振動を受けても発振周波数が原子の共鳴周波数からはずれることのない安定な波長選択素子を備えていること。

我々はまず④に着目し、種々の波長選択方式について検討したが、Faraday filter による方法が適当であると考え、予備的な実験を行った。この方法は観測対象と同じ原子をレーザー共振器内に導入し、その共鳴線に発振周波数を固定化するものであり、回折格子、プリズム、エタロン等を用いる他の方法に比べ機械的振動や温度変化の影響を受けにくいという特長を持つ。Faraday filter による色素レーザーの周波数固定化は Sorokin ら [3] によって試みら

* 宇宙研究特別事業費による研究論文

** 京都大学工学部

れたが共鳴線の中心での発振は得られず，中心から8～17 GHz 離れた所での発振を得るに留まっている．そこで我々は共鳴線の中心での発振が可能かどうか簡単な解析を行なって調べてみた．その結果，中心での発振は必ずしも不可能ではないと考えローダミン6G連続発振色素レーザをナトリウムD線に固定化する実験を行なった．そして D_1 及び D_2 線の中心での単一モード発振を得ることが出来た [4]．

2. ファラデーフィルタの原理と特性

ファラデーフィルタは磁気光学効果の1つであるファラデー効果を用い，原子の吸収線付近の光のみ通過させる光学フィルタである．試料原子を封入したセルに磁場を印加し，磁場方向と平行に直線偏光を入射させると左右円偏光に対する屈折率の差により偏波面が回転する（ファラデー効果）．試料原子の吸収線近傍では異常分散のため比較的大きな，しかも光の周波数に大きく依存する回転が見られる．このセルの両端にその偏光軸が互いに直交する直線偏光子を設けると回転角が $\pi/2$ の奇数倍の光に対して透過率が最大となるフィルタが得られる．

ファラデーフィルタの透過率の周波数特性を求めるためには磁場中の原子の吸収線付近の光に対する応答を知る必要がある．すなわち回転角 θ を決定する左右円偏光に対する屈折率 n_+ ， n_- と気体の吸収損失を与える1波長当りの吸収 κ_+ ， κ_- を周波数の関数として求めなければならない．古典分散理論によれば n_+ ， κ_+ は

$$n_+(\omega) - 1 = \frac{\pi e^2 N f}{m \omega_0 \Delta \omega_D} \sum_i S_i^+ \operatorname{Re} \left[Z \left(\frac{\omega_0 + \omega_i^+ - \omega + i\gamma}{\Delta \omega_D} \right) \right] \quad (1)$$

$$\kappa_+(\omega) = - \frac{\pi e^2 N f}{m \omega_0 \Delta \omega_D} \sum_i S_i^+ \operatorname{Im} \left[Z \left(\frac{\omega_0 + \omega_i^+ - \omega + i\gamma}{\Delta \omega_D} \right) \right]$$

で与えられる．ただし e ， m は電子の電荷及び質量， ω_0 ， f は吸収線の中心周波数及び振動子強度（oscillator strength）， $\sqrt{\ln 2} \Delta \omega_D$ ， γ はドップラー幅（HMHW）と均一幅（HMHW）， N は原子の数密度を表わす． S_i^+ と ω_i^+ は右円偏光に対する i 番目の吸収成分の相対強度及び中心周波数からのずれを表わし，一般にこれらは磁場 H の関数である．また Z はプラズマ分散関数である．左円偏光に対しても（1）式と同様の式が成り立つ．

このような原子セルに入射する偏光と透過後の偏光の関係は円偏光を基底にとると次の行列で表わせる．

$$\begin{bmatrix} \exp[-ik_0(n_+ - i\kappa_+)l] & 0 \\ 0 & \exp[-ik_0(n_- - i\kappa_-)l] \end{bmatrix} \quad (2)$$

ただし k_0 は真空中の波数， l はセルの長さである．基底を直線偏光にとりなおすと原子セルの作用は，

$$R = e^{-\bar{\beta}l} \begin{bmatrix} \cos(\theta - i\eta) & -\sin(\theta - i\eta) \\ \sin(\theta - i\eta) & \cos(\theta - i\eta) \end{bmatrix} \quad (3)$$

$$\bar{\beta} = \frac{k_0}{2}(\kappa_+ + \kappa_-), \quad \theta = \frac{k_0 l}{2}(n_- - n_+), \quad \eta = \frac{k_0 l}{2}(\kappa_- - \kappa_+)$$

で表わせる。ただし両偏光に共通の位相因子は省略した。特に $\beta = \eta = 0$ ，すなわち σ_+ ， σ_- 偏光双方に対し吸収がない時は純粹な回転素子になることがわかる。

また，原子セル両端の直線偏光子 A，B の作用は直線偏光を基底にとると，

$$A = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & a \end{bmatrix}, \quad B = \begin{bmatrix} b & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (4)$$

で表わせる。ただし $0 < a, b < 1$ である。

さてこれらの素子を組合せて，第1図のような共振器系を構成したとする。ある偏光の光がこの共振器を一巡した時，その偏光がもとの偏光と一致しているのでなければ定常的なレーザー発振は得られない。すなわちミラー M_1 上の偏光 \mathbf{E} は

$$[BRAARB] \mathbf{E} = \lambda \mathbf{E} \quad (5)$$

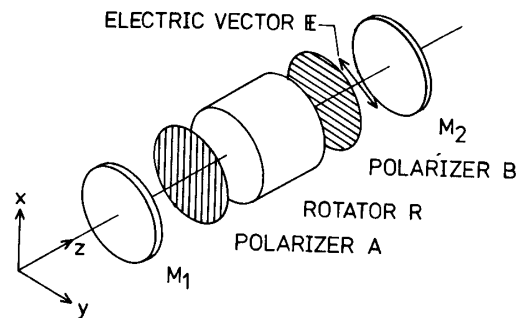
をみたす必要がある。固有値 λ をきめる固有方程式は次のようになる。

$$\lambda'^2 - \frac{1}{2} [(1+a^2)(1+b^2) \cos 2(\theta + i\eta) - (1-a^2)(1-b^2)] \lambda' + a^2 b^2 = 0 \quad (6)$$

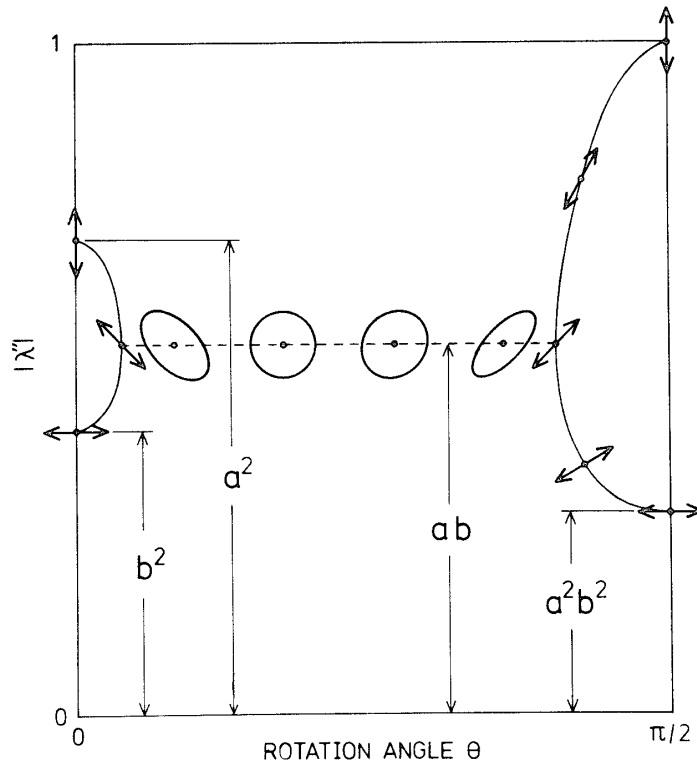
ただし $\lambda' = \lambda / e^{-2\bar{\beta}l}$ とおいた。

この固有方程式を解いて得られる固有値を λ_i ($i=1,2$) それに対応する固有ベクトルを \mathbf{E}_i とおく。 λ_i が実数のときは固有偏光 \mathbf{E}_i は直線偏光，それ以外のときは楕円偏光である。

$1 - |\lambda_i|^2$ は固有偏光 \mathbf{E}_i が共振器内を一巡したとき，失なうエネルギーの割合を表わす。共振器内に偏光に依存しない単行電力増幅率 G をもつ増幅素子を挿入した場合 $G^2 |\lambda_i|^2 > 1$ がモード \mathbf{E}_i の発振条件であり，これは， $|\lambda_i| > G^{-1}$ とも書ける。そこで $|\lambda_i|$ をファラデーフ



第1図 ファラデーフィルタを含む共振器系

第2図 透過率 $|\lambda_1''|$ と固有偏光 \mathbf{E}_1 の θ 依存性

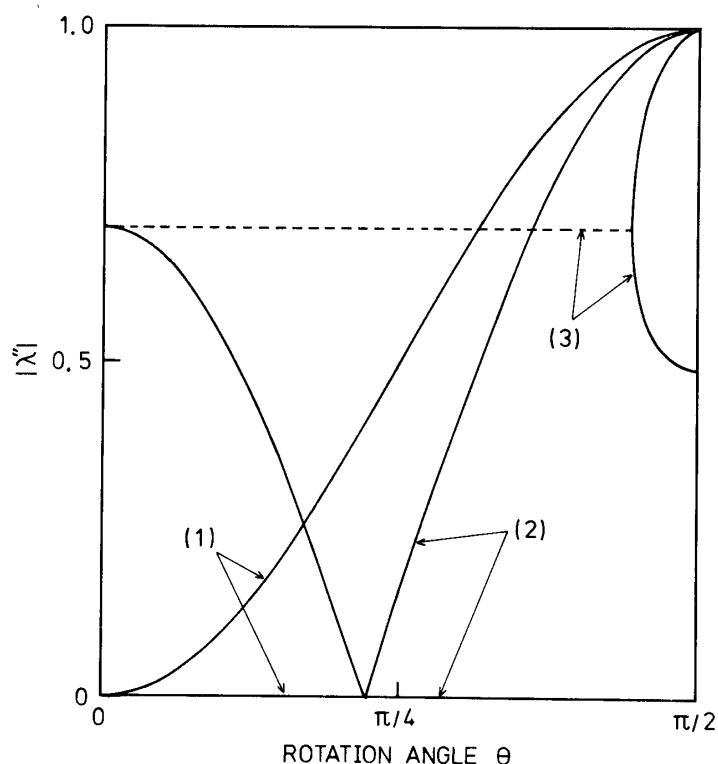
フィルタのモード \mathbf{E}_1 に対する透過率 (transmission), また2つの $|\lambda_i|$ のうち大きい方を単にファラデーフィルタの透過率と呼ぶことにする.

$|\lambda_i|$ についてもう少し具体的に調べるため $\eta \ll 1$ の場合, すなわち σ_+ , σ_- 両偏光に対する吸収の差が小さい場合を取扱う [4]. この場合固有方程式 (6) は

$$\lambda''^2 - \frac{1}{2} [(1+a^2)(1+b^2) \cos 2\theta - (1-a^2)(1-b^2)] \lambda'' + a^2 b^2 = 0 \quad (7)$$

$$\lambda'' = \lambda \left[\frac{e^{-k_0 \kappa + l} + e^{-k_0 \kappa - l}}{2} \right]^{-1}$$

と簡単になる. $|\lambda_i''|$ を θ の関数として表わしたのが第2図である. また固有偏光 \mathbf{E}_1 もいくつかの θ に対して示してある. $\theta = 0$ に対しては透過率が a^2 程度に抑えられているのに対し, $\theta = \pi/2$ に対しては透過率は1に達しフィルタとして機能することがわかる. 次に偏光子の性能 a , b を具体的に定めた時の $|\lambda_i''|$ のグラフを第3図に示す. (1) $a = b = 0$, (2) $a = 0$, $b = 0.84$, (3) $a = b = 0.84$ の3つの場合が示されているが0.84という値は屈折率が1.4~1.5のガラス板をブルースター窓として用いた場合を想定している. 他方0という値は偏光子として通常用いられる Glan-Thompson prism や dichroic polarizer を想定している. ここで注目すべきことはブルースター窓のような不完全な偏光子を用いた場合



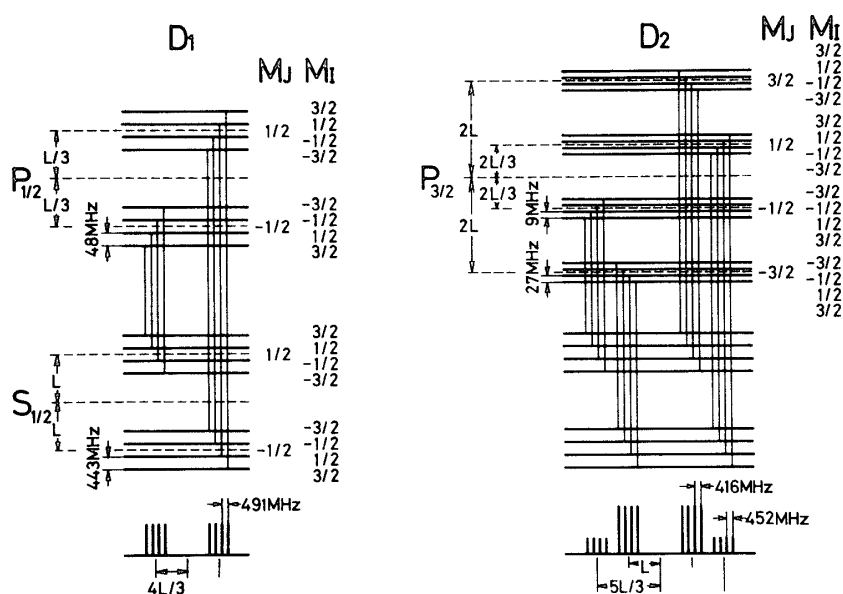
第3図 透過率 $|\lambda_i''|$ の θ 依存性 (1) $a = b = 0$ (両方とも完全な偏光子) の場合 (2) $a = 0, b = 0.84$ (一方は完全な偏光子, 他方はブルースター窓) の場合 (3) $a = b = 0.84$ (両方ともブルースター窓) の場合

の方が $\theta = \pi/2$ 付近で透過率の勾配が急峻になっていることである。つまりブルースター窓を用いたファラデーフィルタの方が周波数選択性が良いと言える。さらにブルースター窓は他の偏光素子に比べ挿入損失が小さく好都合である。ただこの場合注意しなければならないのは $\theta = 0$, すなわち吸収線から離れた光に対する透過率 $|\lambda_i''(\theta = 0)|$ が0でないことである。レーザーの増幅率 G が, $G \cdot |\lambda_i''(\theta = 0)| > 1$ をみたせば, 吸収線以外の周波数での発振が生じてしまう。従ってパルスレーザーのように増幅度が大きい場合は a, b の小さい偏光素子を用いなければならない。

さてファラデーフィルタの特性をナトリウム D_1 線 ($3^2 S_{1/2} - 3^2 P_{1/2}$, 589.6 nm), D_2 線 ($3^2 S_{1/2} - 3^2 P_{3/2}$, 589.0 nm) について計算してみる。Na原子の蒸気密度 N は温度 T [K] によってきまるが, ここでは文献 [5] に与えられた実験式を用いる。

$$N = 10^{23.715 - 5257.7/T} \text{ [cm}^{-3}\text{]} \quad (8)$$

D_1, D_2 線の振動子強度は文献 [2] に従って $f_{D_1} = 0.3250, f_{D_2} = 0.6487$ とした。強磁場下 (500 G 以上) での D_1, D_2 線に関するエネルギー準位を第4図に示した。 ^{23}Na は核



第4図 強磁場下での D_1 , D_2 線の構造とエネルギー準位

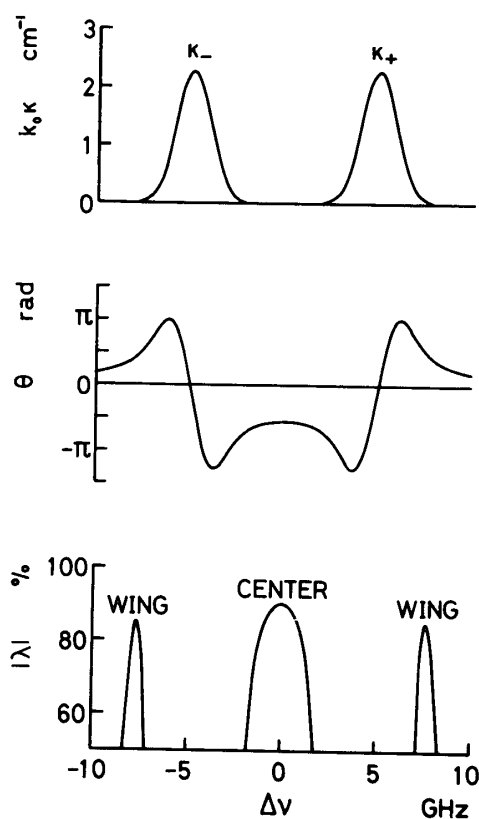
スピン $3/2$ を持ち、各ゼーマン副準位は4つの超微細構造に分かれている (Back-Goudsmit 効果). 許容遷移とその相対強度も第4図に示されている. ただし L は磁場に比例した量で μ_B をボーア磁子とすると $L = \mu_B H$ で定義される. 相対強度は磁場に依存しない. 吸収線の均一幅 γ はバッファガスによる衝突広がりを考慮し $2\pi \times 100$ MHz とした. 実験条件に合わせてセル長は $l = 10$ cm, 直線偏光子については $a = 0$, $b = 0.84$ とした. $a = 0$ としたのはセルのブルースター窓の他に色素の膜状の流れがブルースター角で光軸と交っていることと, 色素の増幅度の偏光依存性 [6] を考慮した結果である.

計算結果の一例として第5図に D_1 線, $T = 441$ K, $H = 2.7$ kG の場合の (a) 吸収, (b) 回転角, (c) 透過率を周波数の関数として示す. 第5図 (c) に示すように, 一般に透過率は吸収線の中央付近に1つ, 両翼に対称に2つ, 計3つのピークを持つ. 実験上容易に変化させられるパラメータは磁場と温度であるから透過率90%以上を与えるこれらのパラメータの範囲を第6図に示す. 両翼での発振はある温度以上で必ず起こるのに対し中央での発振は磁場の上限をきめると5~10 K程度の温度範囲でしか得られない. 従って実験上, セルの温度制御は重要である. S, T はそれぞれ透過率が1つ, 2つのピークを持つことを示し1モード, 2モードでの発振の可能性のある領域を示す.

2. 実験装置及び結果

実験装置のブロックダイアグラムを第7図に示す. ローダミン6Gのエチレングリコール溶液の jet を全線2Wの Ar^+ レーザで励起した. 共振器は全長1mの3枚ミラー構成で出力ミラーは反射率96%の平面鏡, 他の2枚は曲率半径5cmの全反射鏡である. ナトリウムセルは内径15mm, 有効蒸気長10cmのステンレス製ヒートパイプ炉 [7] で両端にブルー

スター窓（BK7製）を取り付けたものである。内部には1g程度の金属ナトリウムと10 Torrのヘリウムを封入した。温度は外壁につけた熱電対（AC）で検出し、ヒーター電流をオンオフ制御した。多層ソレノイドは光軸に沿って一様な磁場を3 kGまで発生できる。

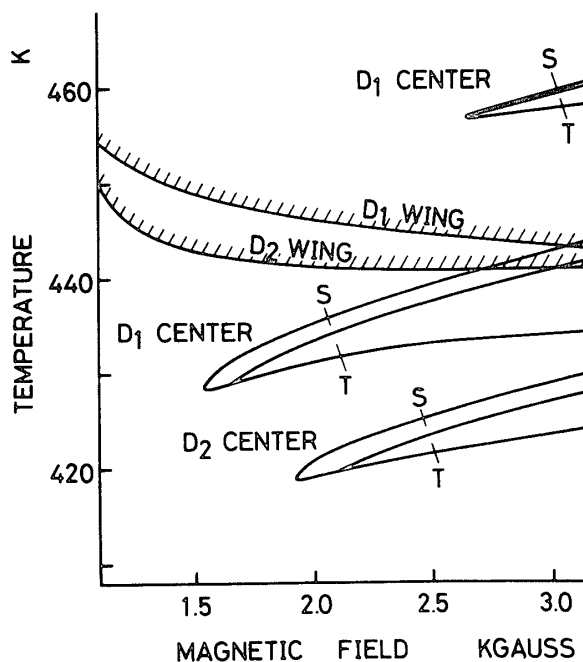


第5図 温度441 K, 磁場2.7 kG のときの D_1 線の (a) 吸収係数 (b) 回転角 (c) 透過率

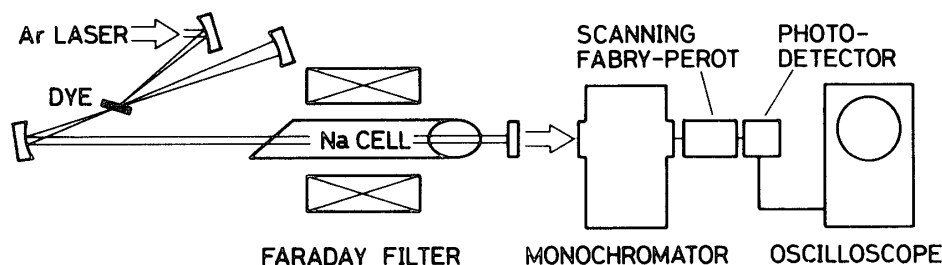
レーザ光を分光器に通し、 D_1 、 D_2 線の判別を行った後、掃引型ファブリペロ干渉計でスペクトルの解析を行った。ファブリペロ干渉計は自由スペクトル域8-GHz, フィネス200のものを用いた。

実験はヒートパイプ炉の温度をさまざまな温度に設定し各温度に対し磁場の値を0~2.8 kGまで掃引し発振域を探した。その結果480 K付近で D_2 線, 490 K付近で D_1 線の発振が見られた。発振光の偏光方向は出力側ミラーに近い方のブルースター窓の透過軸にほぼ一致しており、ファラデー回転による発振であることが確認された。発振光のスペクトルの観測例を第8図に示す。磁場を上げてゆくとある磁場で単一モード発振を開始し、さらに磁場を増すと2つのモードに分かれ出力が減少しながら離れてゆく。そして発振が停止した。

温度を上げてゆくと500 K, 505 Kで D_2 、 D_1 線の発振が再び起り、さらに高温では常に両線での発振がみられた。この高温領域でのスペクトルを第9図に示す。この場合、ある



第6図 透過率90%以上を与える磁場と温度

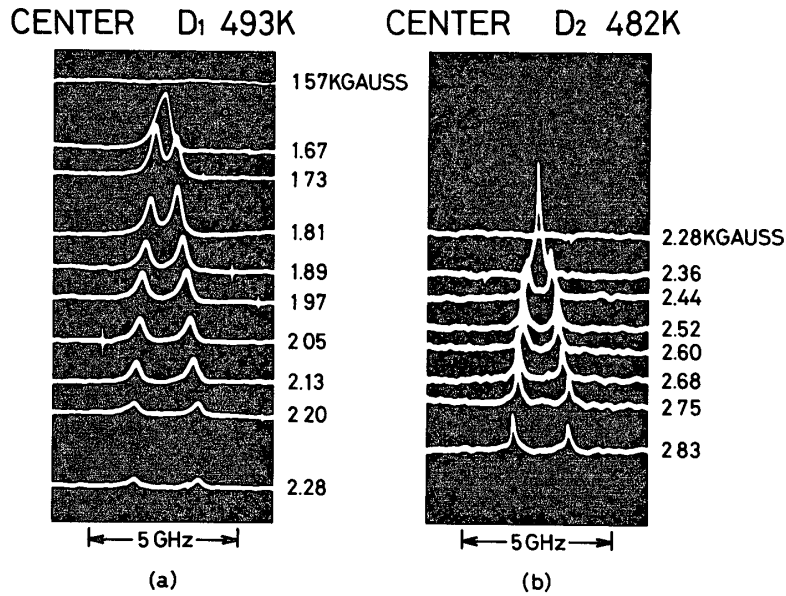


第7図 実験のブロック図

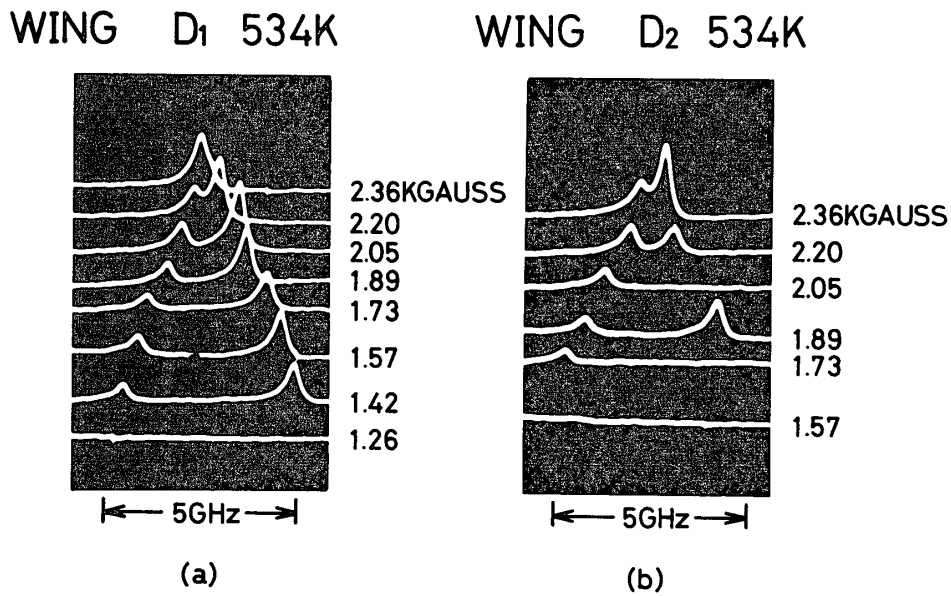
磁場で2モードの発振が開始し、次第に出力を増しながら対称に移動してゆくのが見られた。

発振の温度依存性を前節の結果(第6図)と比較すると480 K, 490 K付近での発振は中央で、500 K, 505 K以上での発振は両翼で生じていると考えられるがさらにスペクトルの磁場依存性が理論と一致するか調べるため、ファラデーフィルタの透過率の周波数特性を温度一定で磁場をパラメータとして計算した(第10図, 第11図)。スペクトルの磁場依存性と透過率のそれはよい対応を示している。第9図の両翼での発振のスペクトルで2つのモードが重なっているのは周波数が一致しているのではなく自由スペクトル域(8 GHz)の整数倍だけ隔たっていると解釈すべきである。

また低温領域, 高温領域それぞれの発振光を磁場のかかっていないNaセルに照射した結



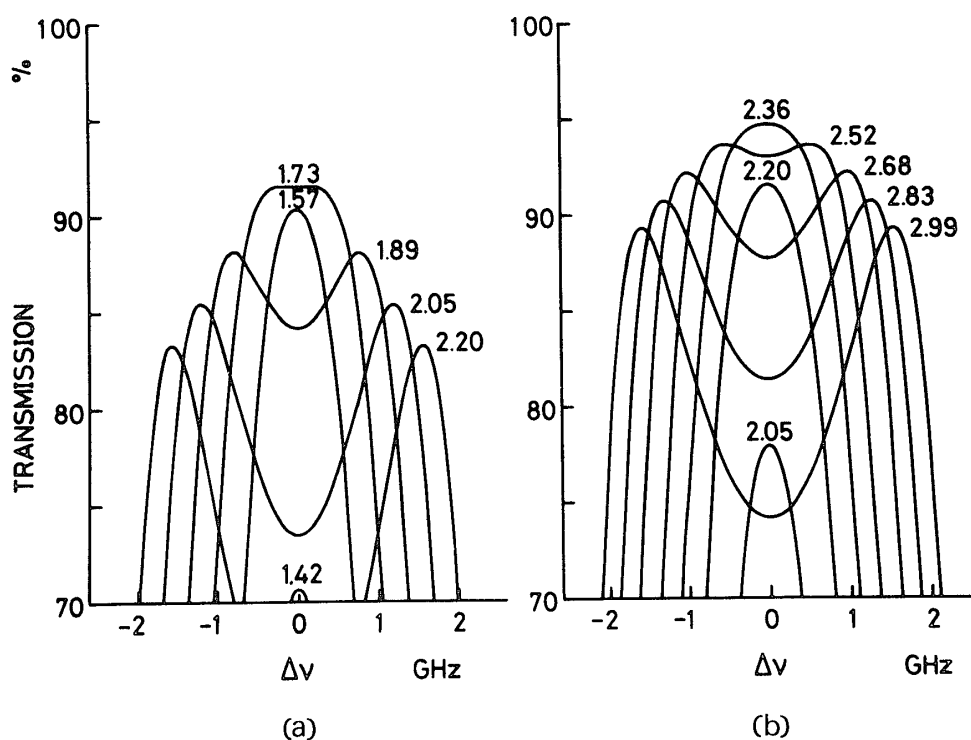
第8図 レーザ光のスペクトル（低温領域）



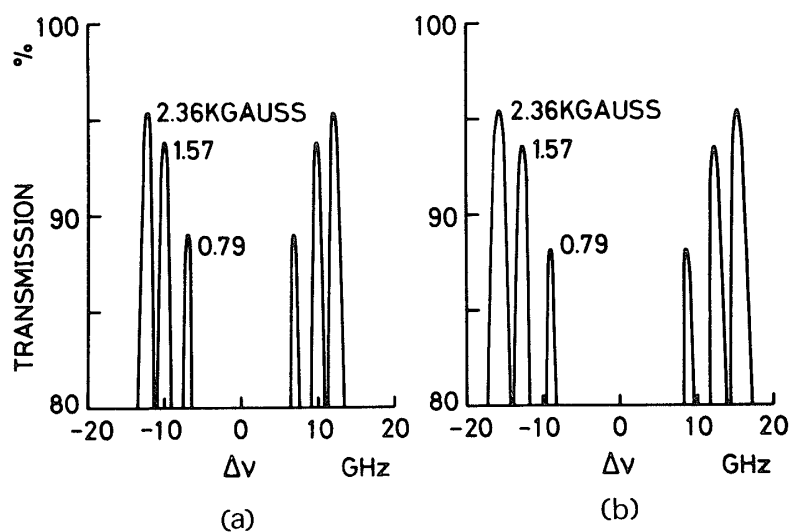
第9図 レーザ光のスペクトル（高温領域）

果，前者に対してのみ共鳴蛍光が観測された．すなわち前者は中央での発振後者は両翼での発振であることが確認された．

実験による温度が計算によるものより 55~60 K 高い方へずれているのは，ヒートパイプの外壁の温度を測定し，それを内部の温度とみなしていることや，内部の液体ナトリウムの表



第10図 中央における透過率の磁場依存性

(a) D_1 線 430 K(b) D_2 線 423 K

第11図 両翼における透過率の磁場依存性

(a) D_1 線 470 K(b) D_2 線 470 K

面が不純物で覆われて、飽和蒸気圧に達していないことなどが原因していると思われる。

4. 今後の課題

前節で述べた基礎実験の結果、ファラデーフィルタを用いれば比較的簡単に発振波長を吸収線に固定できることがわかった。今後はさらに小型化、省電力化をはかり飛翔体への搭載の可能性を探りたい。

まずナトリウムセルについて言えば、現在はヒートパイプ炉を用いているのでかなり大型（外径40 mm, 全長30 cm）であるが、ガラス製の通常のセルを用いれば径10 mm, 長さ30~50 mm程度にできる。この場合問題になるのはナトリウムによるガラスの侵蝕であるがこれは溶融石英やアルミノシリケートガラス等を用いれば数10時間の寿命は確保できる。またセルの小型化に伴ない、磁場発生用ソレノイドも小型化でき、さらに永久磁石の併用により省電力化も可能であろう。

本実験で用いた連続発振色素レーザーは励起光源である Ar^+ レーザが大型、低効率の装置であるため小型化は望めない。従って色素レーザーとしてはフラッシュランプ励起のパルス動作のものを用いるのが適当であると考えられる。パルス発振色素レーザーは連続発振のものに比べて利得が高いのでファラデーフィルタで波長固定化を行なうに当っては偏光特性のよい(式(4)で a, b の小さい)直線偏光子を用いる必要がある。連続発振の場合、先に述べたような比較的簡単なモデルでファラデーフィルタの特性を説明することが出来た。しかしパルス動作の場合、共振器内の電磁界は時間とともに変化し、それに伴ないファラデーフィルタの透過特性も複雑に変化すると考えられる。従って今後はそのような効果を取り入れたモデルを考え解析を行ない、同時に実験も行なってゆく必要がある。

本報告ではナトリウム D 線への周波数固定化についてのみ述べてきたが他の原子にこの方法を適用できるこのは言うまでもない。ファラデーフィルタを構成できるための条件は次のようなものである。①原子の数密度 N を充分用意できること、②遷移の振動子強度 f が大きいこと、③ゼーマン分離したとき、中心付近に σ 吸収成分が残らないこと。①、②の条件は独立ではなく Nf が充分大きければよく、おおよその目安として 10^{11}cm^{-3} 以上ならファラデーフィルタが作れる。

ナトリウムと同じアルカリ金属であるカリウム、リチウム、セシウム、ルビジウムでファラデーフィルタを作るのは比較的容易でいずれも D 線への周波数固定化ができるだろう。このうち大気物理の立場から重要なのはカリウムとリチウムである。次に実現容易なものは希ガスの準安定状態からの遷移への固定化である。我々はネオンの放電管を用いたファラデーフィルタで $1s$ から $2p$ への遷移のうち、5つの遷移に周波数固定化を行なった [8]。同様な方法を用いればヘリウムについても 1083 nm ($2^3\text{S} - 2^3\text{P}$), 587.6 nm ($2^3\text{P} - 3^3\text{D}$) などの吸収線への固定化は可能であろう。また分子に関して言えば2原子分子程度であれば基底状態からの遷移に適用できる可能性もある。

1977年8月20日

参 考 文 献

- [1] A. J. Gibson and M. C. W. Sandford, *Nature* **239**, 509 (1972)
- [2] W. M. Fairbank, Jr., T. W. Hansch, and A. L. Schawlow, *J. Opt. Soc. Am.* **65**, 199 (1975)
- [3] P. P. Sorokin, J. R. Lankard, V. L. Moruzzi, and A. Lurio, *Appl. Phys. Letters* **15**, 178 (1969)
- [4] T. Endo, T. Yabuzaki, M. Kitano, T. Sato, and T. Ogawa, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-13**, No. 10, Oct. 1977 (in press)
- [5] T. Yabuzaki, M. Kitano, T. Endo, and T. Ogawa, *Japan J. Appl. Phys.* **16**, 849 (1977)
- [6] F. C. M. Coolen, L. C. Baghuis, H. L. Hagedoorn, and J. A. van der Heide, *J. Opt. Soc. Am.* **64**, 482 (1974)
- [7] P. P. Sorokin, J. R. Lankard, E. C. Hammond, and V. L. Moruzzi, *IBM J. Res. Developm.* **11**, 130 (1967)
- [8] C. R. Vidal and J. Cooper, *J. Appl. Phys.* **40**, 3370 (1969)
- [9] T. Yabuzaki, T. Endo, M. Kitano, and T. Ogawa, *Opt. Commun.* (in press)