

共鳴散乱観測用色素レーザの開発(Ⅱ)*

北野正雄**・藪崎 努**・小川 徹**

Development of Dye Laser System for Resonance Scattering Experiments II

By

Masao KITANO, Tsutomu YABUZAKI, Toru OGAWA

Abstract: The dye laser system with a Faraday filter is discussed to lock the oscillation frequency to the absorption lines from metastable or short-lived-excited states by showing the experimental results of locking to the $1s-2p$ transitions of neon and the 2^3P-3^3D transition of helium.

The flashlamp-pumped dye laser system using a Faraday filter with a small permanent magnet is also discussed in connection with the aircraftborne laser system.

1. ま え が き

共鳴散乱法による微量成分の検出は、質量分析法に比べ原子・分子の内部状態まで知り得るという大きな特長を持つ。すなわち、励起状態原子及び分子のみを選択的に測定できるのである。従って、励起状態原子が重要な寄与をする光化学反応の解明に役立つものと期待される。

色素レーザはその発振波長が大きく変化できることから共鳴散乱観測用光源として非常に有用であり、実験室においても [1]、また、レーザレーダとしても [2]、広く用いられている。この色素レーザを飛翔体に搭載し、共鳴散乱を用いた観測を行えば多くの有用なデータが得られると期待されるが、レーザ搭載に当たって多くの問題を解決しなければならない。

まず第1は、小型軽量化及び省電力化であるが現在の所、フラッシュランプ励起色素レーザが最も有望である。これについては3節で詳しく述べる。

第2の問題点は、機械振動に強い波長選択素子の開発である。これは将来、色素レーザより優れた波長可変レーザ（例えば半導体レーザ）が実用可能になった場合でも解決しなければならない問題である。

我々が基礎実験を進めてきたファラデーフィルタ [3] は従来の回折格子、プリズム、エ

* 宇宙研特別事業費による研究論文

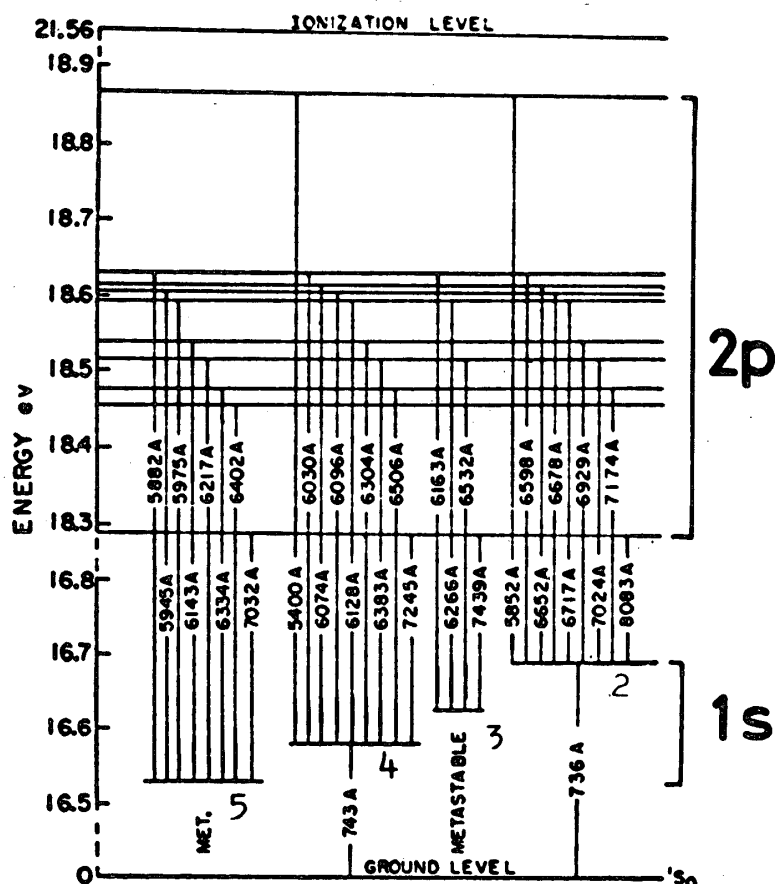
** 京都大学工学部

タロンなどの分光素子を流用する方法に比べ機械的振動や温度変化に強く、上述の目的に適した波長選択方法である。

[3]では特に連続発振色素レーザーのナトリウムD線(3S-3P; 589.6, 589.0 nm)への固定化について述べた。その後我々はネオン原子の1s-2p間の遷移及びヘリウム原子の 2^3P-3^3D (587.6 nm)について固定化に成功した。ナトリウムD線の下準位が基底状態であるのに対し、これらの遷移の下準位はいずれも励起状態であるがこのような励起状態からの遷移への固定化の試みは従来殆んどない。従ってこのファラデーフィルタ色素レーザーは励起状態原子の密度測定や分光に役立つと期待される。

2. ファラデーフィルタ

ファラデーフィルタを用いて色素レーザーの波長を固定化する条件は、下準位密度 N と振動子強度 f の積 Nf が約 10^{11} 以上となることである [3]。



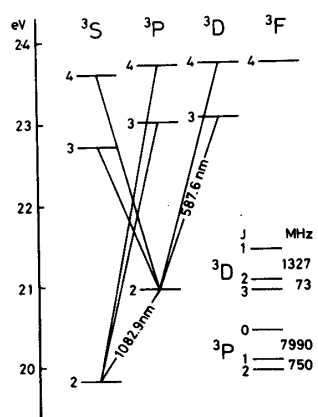
第1図 ネオンのエネルギーダイアグラム。基底状態, 1s, 2p 状態以外は省略してある。

第1表 ネオンファラデーフィルタにより固定可能な吸収線

TRANSITION		λ nm	2J+1	g FACTOR		f	$N \times 10^{-11}$	$Nf \times 10^{-11}$	ISOTOPIC SHIFT	
$1s_5$	$2p_6$	614.3	5 5	1.503	1.229	0.122	20	2.4	1.66 GHz	
	$2p_4$	594.5	5		1.301	0.056			1.1	1.72
	$2p_3$	588.2	3		1.340	0.040			0.8	1.74
$1s_4$	$2p_7$	638.3	3	1.464	0.669	0.170	10	1.7	1.68	
	$2p_4$	609.6	5		1.301	0.157			1.6	1.73
	$2p_3$	607.4	1			0.114			1.1	1.70
$1s_3$	$2p_5$	626.7	3		0.999	0.394	5	2.0	1.65	
	$2p_2$	616.4	2		1.340	0.273			0.4	1.65

ネオンでは、基底状態からの共鳴線は紫外域にあるが第1図に示すように、 $1s - 2p$ 間には600 nm付近に多数の遷移が存在する。ネオンガスでグロー放電を行うと、 $1s_5, 1s_3$ は準安定状態であり、また $1s_4, 1s_2$ はradiation trappingの効果により、これらの準位に 10^{12} cm^{-3} 程度の密度が得られる。従って、振動子強度が 10^{-1} 程度であれば固定化が可能である。第1表にその条件をみだし、しかも使用する色素ローダミン6 Gの発振域にはいる遷移の一覧を示す。

また、ヘリウムでもグロー放電中では $2^3P, 2^3S$ などに比較的高い密度を得ることができる。このうち 2^3P から 3^3D への遷移は587.6 nmでローダミン6 Gの発振域に入っている。

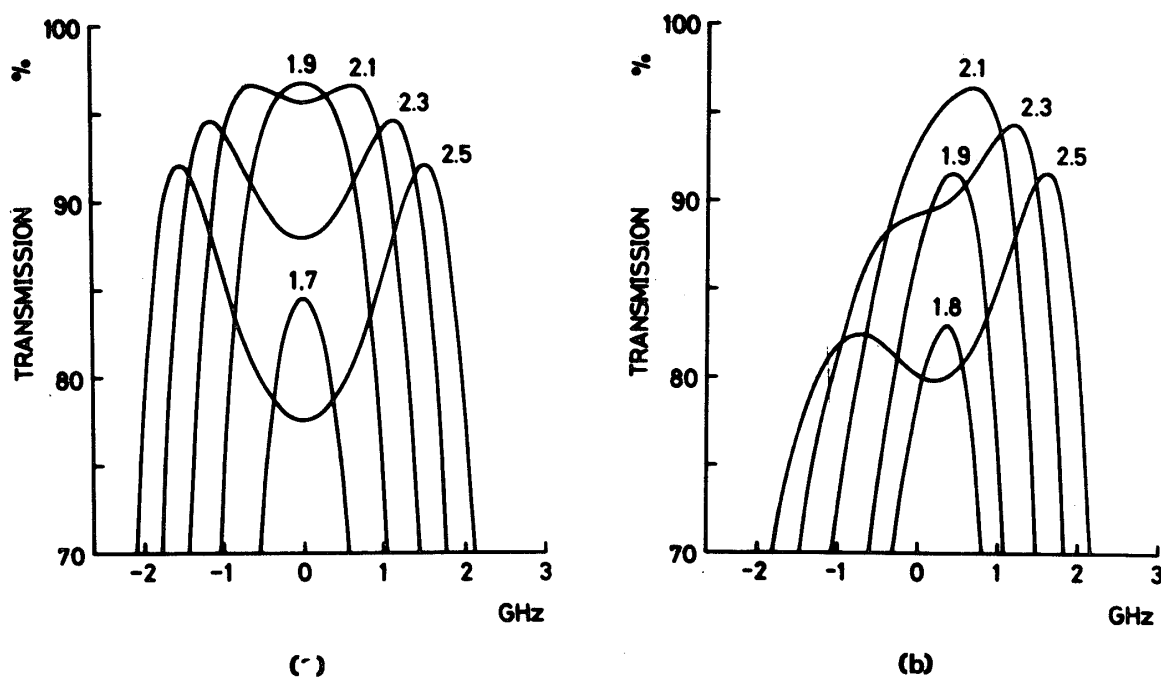


第2図 ヘリウムのエネルギーダイアグラム

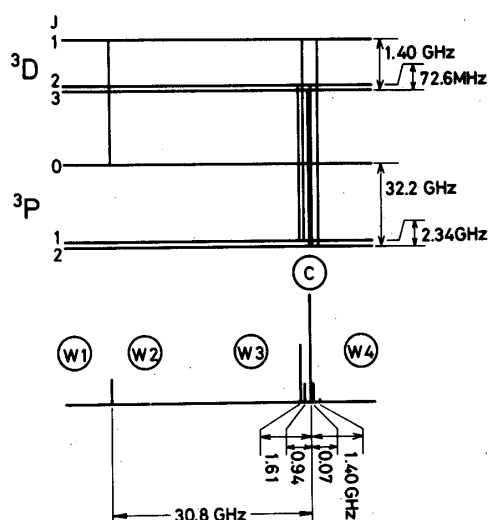
る(第2図).

ネオン及びヘリウムファラデーフィルタの透過率は、ナトリウムファラデーフィルタの場合[3]と同様の方法で求めることができる。すなわち、磁場 H 及び下準位密度 N を与えたときの吸収線付近の吸収及び分散を求めれば、ファラデーフィルタの透過率を求めることができる。ナトリウムの場合、下準位密度 N は飽和蒸気圧できまり、セル温度 T のみの関数であった。ネオン、ヘリウムの場合は放電中の励起状態の密度に相当するわけで、ガス圧、放電電流、放電管の寸法、構造、混合ガス、あるいは磁場などに複雑に依存している。従って、透過率の計算では N を未知のパラメータとしておき、実験結果とつき合わせてこれを逆に求めた。

ネオンの場合、注意しなければならないのは安定な同位体の存在である。すなわち、天然のネオンは Ne^{20} 、 Ne^{21} 、及び Ne^{22} の 90.92 : 0.257 : 8.82 の混合物であり、各同位体の吸収線は互いに同位体シフトしている。その結果、吸収スペクトルは左右非対称になり、透過率の周波数特性も非対称になる。同位体シフトによる透過率の非対称の例を第3図に示す。 Ne^{20} だけの場合は磁場の増加とともに吸収線中心での透過率が増加し、その後ピークが二つに分離し、左右対称に分裂してゆく。レーザ発振は透過率のピークで生ずるので磁場を0

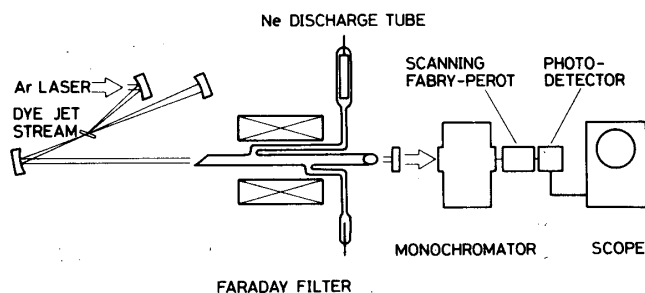


第3図 透過率の非対称の例。(a) Ne^{20} が100%の場合 (b) 天然ネオンの場合(吸収線614.3 nmの中心領域での透過率。下準位密度は $7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 、放電長15 cm、パラメータは磁場 [KG] を表わす。)

第4図 ヘリウム $2^3P - 3^3D$ の微細構造

から増してゆくと、レーザ発振が吸収線の中心で始まり、さらに磁場の増加とともに左右に分れてゆくことが予想される。これはナトリウムの場合と同じである。それに対し、天然のネオンの場合、磁場を増すと Ne^{20} の吸収線より少し Ne^{22} の吸収線へずれた周波数で透過率が上昇する。さらに磁場を増すとピークは右の方へ動く Ne^{20} のときと比べると左ピークが十分抑圧されているのが特長である。それ故、レーザ発振は常に1本のスペクトルで生じ、磁場とともに右へシフトすることが予測される。このような磁場で掃引できる1本スペクトルでの発振は実験の種類によっては非常に有用である。さらに積極的に同位体比を様々に変化させることにより、ファラデーフィルタの特性を制御できる事がわかっているがここではこれについては触れない。

一方、ヘリウムでは同位体の存在は問題にならず、むしろ微細構造の存在がスペクトルの形を複雑にしている。第4図に零磁場における $2^3P - 3^3D$ の吸収線の構造を示す。低磁場領域では30 GHz程度離れた2群の吸収線に分離しており、それぞれがゼーマン分裂をおこす。そして磁場が数 kG 以上になると2群の吸収線が重なってくる。計算の結果、W1~W4



第5図 実験装置のブロック図

及びCの領域で発振可能であることがわかった。

以上の計算結果を踏まえて、実験を行った。実験装置を第5図に示す。ファラデーセルに放電管を用いるほかはナトリウムファラデーフィルタと全く同じ装置である。放電管はパイレックス製で、ソレノイドの磁場が均一な部分でのみ光軸上にプラズマが生成されるよう、二か所に放電の出入口を設けてある。これは、弱磁場の部分で放電が行われ、励起状態原子が生成されると吸収線中心付近に σ 偏光に対する吸収成分が残り透過率が低下するからである。電極はHe-Neレーザ用のものを流用した。放電管の内径は6mm (Heの場合は4.5mm)、有効長は15cmで両端にブルースター窓を入射面が互いに直交するよう取り付けられた。ガス圧は1~数Torr (特にHeの場合は3.1Torr)、放電電流は40mA前後、磁場は0~2.7kGまで変化させた。

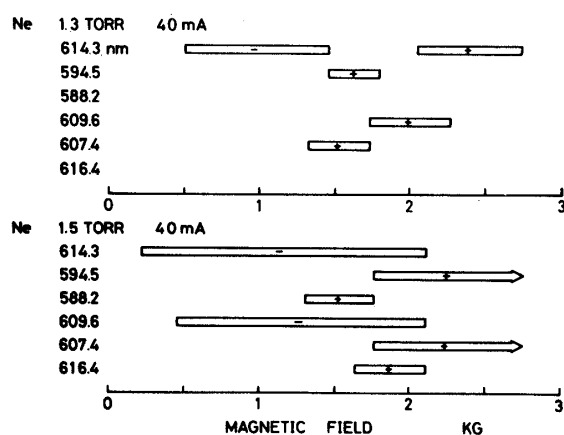
実験は放電電流を一定に保ち、磁場を0から2.7kGまで掃引して、各吸収線での発振の有無、スペクトルを分光器及びファブリペロ干渉計でモニタした。

ネオンの場合の実験結果を第6図に示す。発振スペクトルはいずれも単一モードであった。これは理論的に予測されたように、同位体効果のためである。図中の土は磁場を増した時の周波数シフトの方向を示す。計算結果との対比により+は中央での発振、-は翼での発振であることがわかった。また、磁場の加わっていないほかの放電管にレーザ光を入射し共鳴散乱を測定したところ、+のみで散乱が見られたことも上の結果を支持している。

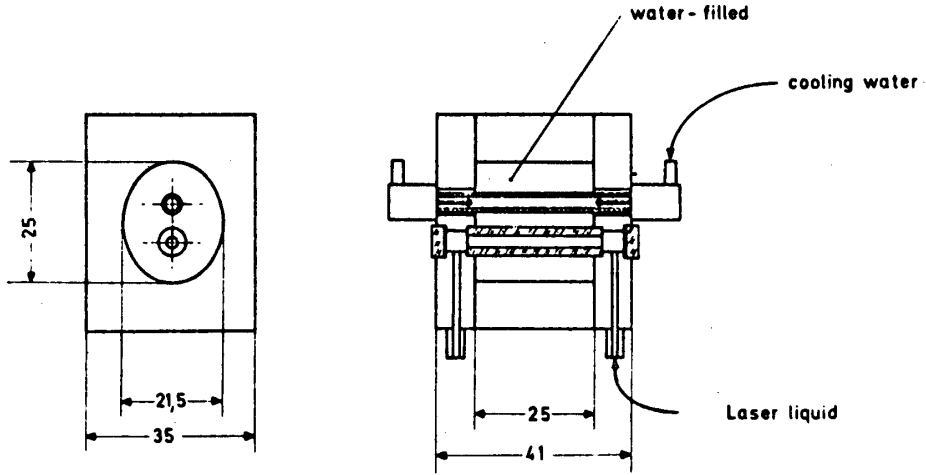
ヘリウムに関する実験例は少なく、1.1kG付近で単一モード発振が見られただけである。今後、パラメータを変化させて実験を行い、発振域を広げるとともに発振スペクトルの吸収線に対する相対位置を明らかにする必要がある。

3. レーザシステムの小型化

本実験で用いた色素レーザは、 Ar^+ レーザ励起の連続発振動作のものである。 Ar^+ レーザは非常に大型で、しかも低効率の装置であるため、飛翔体に搭載することは全く不可能である。現在のところ、励起光源までを含めて最も小型で効率の高い色素レーザはフラッシュラ



第6図 共鳴線の固定可能な磁場範囲 (ネオン)

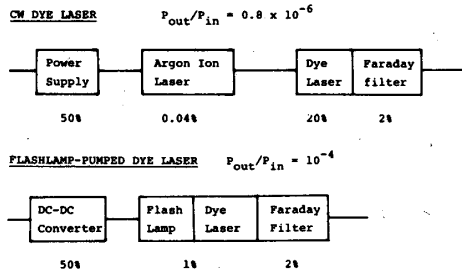


第7図 フラッシュランプ励起色素レーザー (Schmidt による)

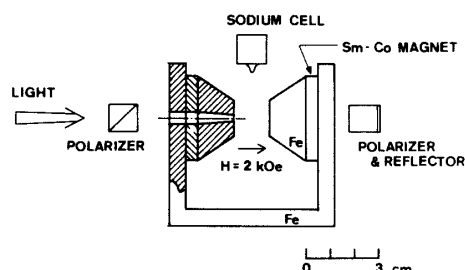
ンプ励起のパルス動作のものである。例えば, Schmidt [4] が開発した高速繰返パルスレーザーは第7図に示すように非常にコンパクトである。

次に, レーザシステムの効率を簡単に見積ってみる。第8図に Ar^+ レーザ励起のCW色素レーザーとフラッシュランプ励起パルス色素レーザーの各段での効率を示した。ここでファラデーフィルタの効率2%というのは狭帯域化に伴う出力の低下及び挿入損失に由来するものであり, これらはどのような狭帯域化素子についても存在する。フラッシュランプ色素レーザーの場合, 平均光出力と電気入力之比はおおよそ 10^{-4} 程度となる。通常, 実験室で共鳴散乱の実験に使用する 10 mW 程度の光出力を得るためには約 100 W の電気入力が必要であることがわかる。

ファラデーフィルタ自体の小型化, 省電力化には磁場発生用ソレノイドコイルを永久磁石に置き換えることが必要である。近年, 磁性材料の発達により残留磁束密度, 保磁力ともに大きな希土類コバルト磁石が使用できるようになった。永久磁石を使用したナトリウムフェ



第8図 レーザシステムの効率



第 9 図 永久磁石を利用したファラデーフィルタ

ラデーフィルタの設計例を第 9 図に示す。間隙部の磁束密度は 2 kG 程度あればファラデーフィルタに使用できる。ナトリウムセルは間隙に合わせて長さを約 10 mm とし、材質はアルミノシリケートガラス（コーニング 1720）を用いる。これは蒸気密度を稼ぐためセルを高温にしたとき、ナトリウムとガラスが反応するのを防ぐためである。

偏光素子としては、ブルスター窓よりも消光比の高いプリズムタイプのもを使用すべきである。これは、パルス色素レーザーは利得が高く、吸収線から離れた所での透過率を十分抑えないと、吸収線以外での寄生発振の恐れがあるためである。また、偏光素子の一方には反射膜をコーティングし、ミラーを兼ねさせ挿入損失の軽減を計っている。

4. ま と め

ファラデーフィルタを用いて、色素レーザーの波長をネオンの $1s-2p$ 間及びヘリウムの 2^3P-3^3D 間の遷移に固定することができた。これによりファラデーフィルタは基底状態からの吸収線だけでなく、励起状態からの吸収線にも応用できることが明らかになった。

レーザーシステムの小型化に関しては、フラッシュランプ励起色素レーザーと永久磁石を使用した小型のファラデーフィルタの組み合わせにより可能であることがわかった。

1978 年 11 月 2 日

参 考 文 献

- [1] W.M. Fairbank, Jr., T.W. Hansch and A.L. Schawlow, J. Opt. Soc. Am. **65**, 199 (1975)
J.A. Gelbwachs, C.F. Klein and J.E. Wessel, IEEE J. Quantum Electron. **QE-14**, 121 (1978).
- [2] A.J. Gibson and M.C.W. Sandford, Nature **239**, 509 (1972).
- [3] 藪崎, 北野, 小川 宇宙研報告 **13**, 923 (1977)
- [4] F.P. Schäfer, *Laser Handbook* ed. F.T. Arecchi and E.O. Schulz-Dubois (North-Holland, 1972) P. 403.