九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

自動化された可変波長色素レーザーの開発とその原子蛍光分析への応用に関する研究

興，雄司
九州大学工学研究科電気工学専攻

https://doi.org/10.11501/3088156

出版情報：九州大学，1991，博士（工学），課程博士
バージョン：
権利関係：

第 2 章

広帯域可変波長色素レーザーの自動化

レーザー媒体に有機色素溶液を用いた色素レーザーは 1966 年に Sorokin 等によって発振が確認されて以来[12]，波長可変なレーザーとして様々な分野で利用されてきた[60]．その波長可変性は色素自体が持つブロードなゲインによるもので，同調素子を用いることで一つの色素で 10~60nm 程度の範囲にわたり任意の波長で波長を変えることができる．これまでに紫外から近赤外に至るまで非常に多くの色素が開発されており，適当な色素を選ぶことによってその波長域で連続的に同調することが可能である．可変波長色素レーザーは分光用光源としてその単色性，指向性，輝度の高さなどの点で従来の光源に比べて非常に優れた特性を持っているため，これまでレーザー分光法の研究で中心的役割を演じてきた．

現在ではすでに，コンピューター制御を用いた高性能の色素レーザーが市販品として入手できるようになっている．しかし分光分析などの工業的な応用に対し，これらのレーザーはまだ不十分な点が多い．本章では工業用分光分析装置の光源にレーザーを組み込む際，現状で得られる色素レーザーの問題点を指摘し，いくつかの新しい発想に基づく広帯域自動可変波長レーザーを提案し試作した．その結果，220~740nm の広い波長域で任意の波長のレーザー光が速いアクセスで発生できる可変波長レーザーを実現することができた．また

コンピューター制御を充分に活用してシステムの自動化を進め，産業現場での使用に耐えるよう操作性の向上を図った．本研究は可変波長レーザーの工業的な応用を推進する上で有益であろうと思われる．

2.1 工業用可変波長レーザーの問題点とその解決法

現在市販されている色素レーザーは分光光源として優れた特性を持っている反面，従来の光源に比べ取り扱いに熟練を要し，メインテナンスに手間がかかるのが問題であった．加えて色素の交換に多くの時間がかかるために，広い波長域を短時間で同調することが困難であった．工業分析装置用の光源とするには，レーザーの知識がない操作者が使用しても所定の性能がメインテナンスフリーに近い状態で得られ，しかも高い信頼性を持つことが要求される．また広いスペクトル域にわたって即座に必要とする波長のレーザー光を得ることができるなら，分光光源としての色素レーザーの用途を拡大するのに役立つであろう．

しかしながらこれらの要求を満たす色素レーザーはまだ存在せず，その実現には多くの困難がある．一般の固定波長レーザーに比べると，可変波長レーザーは微妙な調整が要求される波長同調機構を有しており，また色素レーザーには色素の劣化という宿命的な問題点がある．これらの理想に近づけるために筆者は幾つかの新しい試みを導入した色素レーザーを設計・試作した．

本レーザーシステムを設計するに当たり考慮した点は以下の通りである．

1) 従来の色素レーザーは分光分析用光源としては不必要に高度の性能を持たせたため，装置の信頼性の低下やメインテナンスの繁雑さを招いている面がある．本システムでは出力とバンド幅に関しては分光計測用として必要最小限のレベルに抑えた．しかし，分光光源としての有用性を高める意味で可変波長域は 220nm～740nm と広くとった．

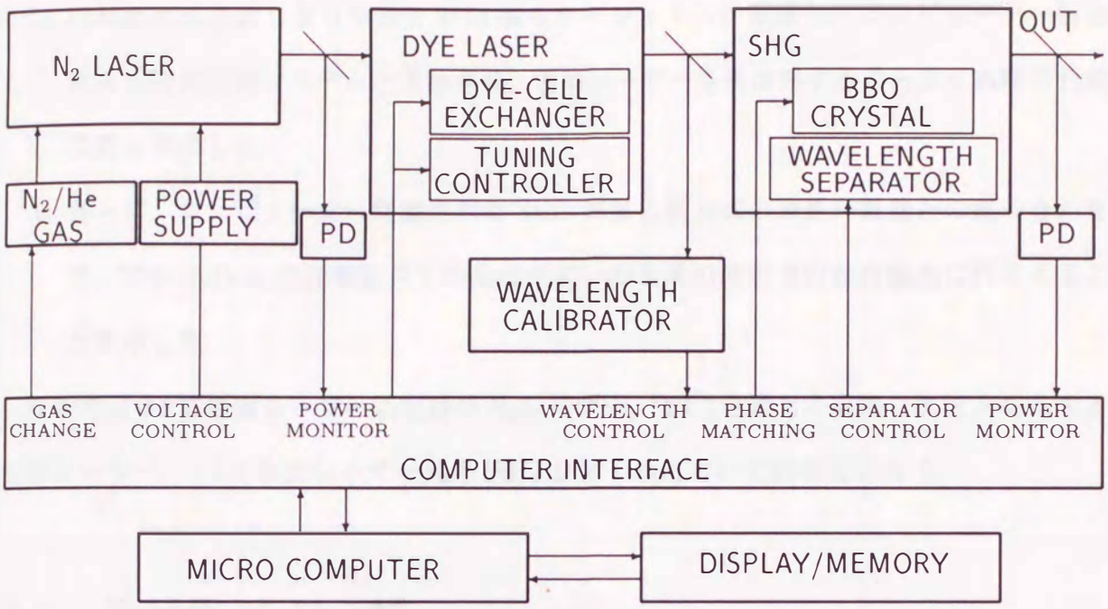


図 2-1: 分光分析用広帯域全自動パルス色素レーザーシステムのブロック図.

2) コンピューター制御による自動化を最大限に推し進め，メインテナンスフリー動作や操作の簡略化，安定性の向上を図った.

3) ターレットによる色素セル交換とコンピューターによる波長制御とを組み合わせて，発振波長選択の即応性を高めた.

以上の点を考慮して試作したレーザーシステムのブロック図を図 2-1に示す．このレーザーシステムは励起用 N_2レーザー，色素レーザー，第二高調波発生 (SHG) システム，オプトガルバニック波長校正装置及びこれらを統合・制御するマイクロコンピューターから成っている．このうちオプトガルバニック波長校正装置については第 3章で述べる.

本レーザーシステムの特徴をまとめると以下のようになる.

1) N_2レーザーはガスの準封じきり動作と長期的なメインテナンスフリー動作を実現するために，大気圧動作下でのガスの内部撹拌とコンピューターによる自動補給を導入した.

2) 内部撹拌式の封じきり色素セル14個をターレット上に配置し，コンピューター制御による波長同調システムと連動させ，色素レーザーを再調整することなく瞬時の色素交換を実現した．

3) さらに，コンピューター制御されたSHG装置と新方式の波長分離器との組み合わせで，220~740nmの任意波長での発振や広い波長域の連続掃引が自動的に行なえることを示した．

本章では2.2で色素レーザー励起用のN_2レーザー，2.3で色素セル交換システムを有する色素レーザー，2.4で色素レーザー光のSHGシステムについて説明を行なう．

2.2 励起用N_2レーザー

2.2.1 試作したN_2レーザーの特長と構成

励起用に採用したN_2レーザーは紫外域(337.1nm)で高出力のパルス発振をするレーザーで，効率や出力の点ではエキシマレーザーに劣るものの，信頼性が高く，安価で使いやすいレーザーである[61]．色素レーザーの励起に使用した場合には容易に広い可変波長が得られるため[9]，本システムの励起用レーザーに適している．

N_2レーザーに関してはこれまでにも多くの報告があり，すでに市販品も多数存在するが，通常N_2ガスを真空ポンプで引きながら使い捨てにするため，ガスの使用量も多く，そのメインテナンスに手間を要する．ガス封じきりの小型N_2レーザーも開発されているが，出力が100μJオーダーで分光光源用装置としては力不足であり，レーザー管の寿命も10^7ショット（20Hzで140時間）と短い[62]．本研究で追求しているレーザーシステムの励起光源としては，完全なガス封じきりのメインテナンスフリーN_2レーザーが理想であるが，現状での実現は困難であるので，それに代わるものとして準封じきりの長期メインテナンスフ

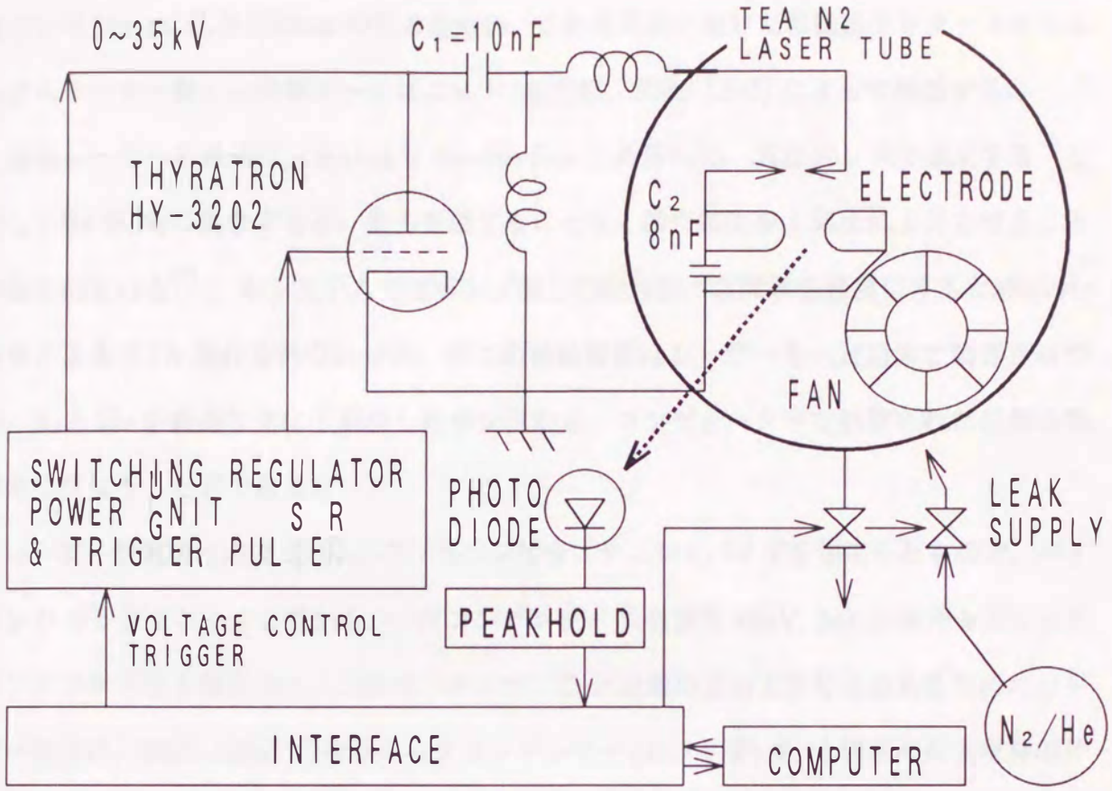


図 2-2: TEA N_2レーザーシステムの構成図.

リーの N_2レーザーを試作した．これはガスの内部撹拌によりその使用量を極力節約したもので，大気圧横放電励起 (TEA) 動作を行なうことでコンピューターによる自動ガス交換を容易にした．その結果，7000ℓの大型ボンベ一本で，2.45×10^8ショットのメインテナンスフリー連続動作が可能なことを示した．これは 20Hz 動作で 3400 時間 (1 日 9 時間使用して約 1 年) に相当する．

図 2-2に試作したN_2レーザー部の構造を示す．本体の寸法は 900(L)×570(W)×400(H)mm^3で，充電用電源とトリガー回路は外部にある．放電回路方式にはエキシマーレーザーに良く使われる自動予備電離容量移行型を採用した．通常はガスを封じきってクロスフローファンで内部撹拌する．ガス内部撹拌用クロスフローファン（佐藤工業所製）はアルミニウム

製で口径 74mm, 長さ 560mm のものを用い，これを外部に設けた駆動用モーター（オリエンタルモーター製）と磁気シールユニット (理学製，RMS-LS-5) によって駆動する．

窒素レーザーの最適ガス圧は通常 50~100Torr であるため，真空ポンプで減圧する．しかし，He を N_2に混合すると，出力を減ずることなく動作気圧を 1 気圧に上昇させることが知られている[63]．本システムではポンプ無しでの自動ガス交換を容易にするために He 混合による TEA 動作を行なわせた．ガスの補給排出はレーザーを一定出力で動作させつつ，N_2と He を最適な比に予混合したボンベから，コンピューターで制御された二個の電磁弁で行なうことができる．

レーザー放電管は内径 200mm のフランジ付きステンレスパイプを加工したもので，バイトン O リングでシールしている．一次コンデンサー C_1は耐圧 40kV, 2nF の高圧セラミックコンデンサーを 5 個並列に，二次コンデンサー C_2は放電の立ち上がりを速めるためにレーザー管内に，30kV,500pF のセラミックコンデンサー (ムラタ製) を 16 個並列に主電極の片側に接続している．主電極は全長 572mm, 幅 20mm のステンレス製でギャップ長 25mm で 10mm の曲率を持った円弧状断面とした．放電管への導入は 4 本のテフロンブッシングを通し，内部にある 16 個の予備電離電極を経由して行なっている．

スイッチング素子は水素サイラトロン (EG&G 社，HY-3202) を用いた．このサイラトロンは耐圧 32kV, 尖頭電流 20kA の最大定格を持ち，本機では余裕を持って動作できるために長い寿命が期待できる．現在のところ 10^9ショット以上無交換で使用しているがまだ安定して動作している．なお，サイラトロンの冷却はファンによる強制空冷である．電源にはコンピューター制御可能な小型の高圧スイッチング電源 (ale 社,MODEL-152L, 最大充電電圧 40kV, 容量 1500J/sec) を用い，一次コンデンサへの充電抵抗には高耐圧のセラミック抵抗器 (東海高熱工業，ER-30AS, 尖頭電圧 35kV)160Ωを使用した．

放電管は O リングを介した石英平行平面窓を持ち，一方の窓の外側に 100%の誘電体

鏡をコートし，両者を平行に調整して共振器としている．各ミラーの調整はシールに用いたOリングの伸縮を利用して行なう程度であるが，利得が極めて高いN_2レーザーはASE（Amplified Spontaneous Emission）によって出力が取り出されるため，共振器はあまり重要な働きはしない．

コンピューターによる制御は，動作繰り返し周波数と充電電圧の設定，電磁弁の開閉によるガス交換，出力エネルギーのモニタリング，出力安定化動作などである．制御は市販のマイクロコンピューター(NEC, PC-9801ES)一台で，色素レーザー・波長校正装置を含めた全システムを同時に管理した．出力モニターにはSiフォトダイオード(浜松ホトニクス, S1226-44BQ)のピーク値を焦電型カロリーメーター(Gentec社ED-100A)で校正して用いた．実際にはフォトダイオードの出力電流を高速オペアンプ(ハリス社, HA-2544)を用いた電流電圧変換回路・積分回路を通してピーク検出用IC(PMI社, PKD-01)でピークをホールドした後，A/D変換インターフェース(Adtec社AB98-05A)を通してコンピューターに1ショット毎に取り込めるようになっている．後述する色素レーザー部・SHG部のモニターでも同様の素子を用いた．コンピューターに取り込まれたモニター値は設定された積算数で平均化することができる．平均化の手法としてはリング型バッファーを使用した移動平均を採用し，100ショット以内の平均化出力をリアルタイムでモニターできる．出力フィードバックも設定されたショット数ごとに適当な重みを付けて行なうことにし，出力値がオーバーシュートを起こさないように調整した．

2.2.2 N_2レーザーの特性

試作したレーザーを大気圧(TEA)で動作させるため，まずTEA動作におけるガスの最適条件を調べた．種々のN_2/Heガス混合比におけるN_2レーザーの出力エネルギーを図2-3に示す．窒素ガス分圧を10, 20, 30Torrにし，Heで希釈して全圧力を1000Torr以下で変化

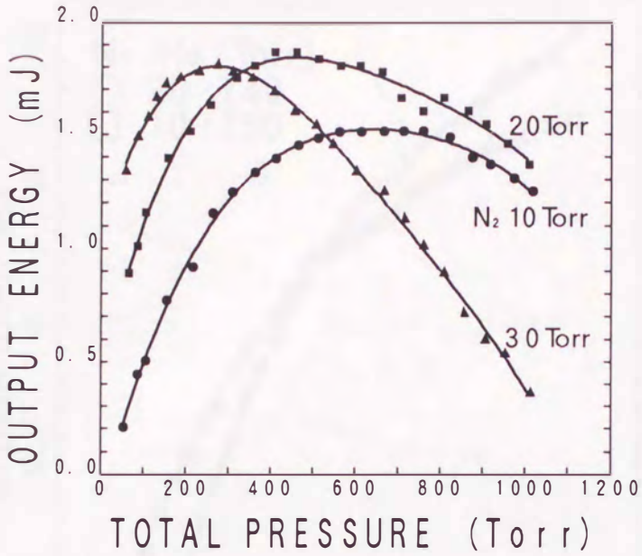


図 2-3: N_2,He 混合時の N_2レーザーの出力エネルギー

させたときの N_2レーザー出力エネルギーを示している．He で希釈しない場合，本 N_2レーザーの最適ガス圧は 200Torr 程度であったが，He に対する N_2分圧が大きくなるにつれ最適圧は高い方に移動し，N_2分圧を 10~20Torr にすると全圧 1 気圧においても低い気圧に比べ大差のない出力エネルギーが得られた．

図 2-4は TEA 動作での充電電圧に対する出力特性である．N_2の分圧が 10Torr と 20Torr とではカーブが途中で交わっており，使用する電圧によって最適混合比が変化していることがわかる．入力電圧 30kV においては N_2分圧 20Torr で 1.8mJ という出力が得られている．このときの総合効率を $E_{in} = C_1V^2/2$ を用いて計算すると 0.04%となった．これらの結果より以下の実験では N_2レーザーの使用ガスは N_2をあらかじめ He で 3%に希釈した (N_2:He=23:740Torr) ものを用いることにした．

次にパワーを見積もるためパルス幅を測定した．図 2-5に高速のバイプラナー光電管とオシロスコープ (テクトロニクス 7904，帯域 500MHz) で観測した TEA 動作時の N_2レーザーの波形を示す．これよりレーザーパルス幅は 4.5nsFWHM となり前述の出力エネルギーをパワーに換算するとピーク出力は 400kW が得られる．

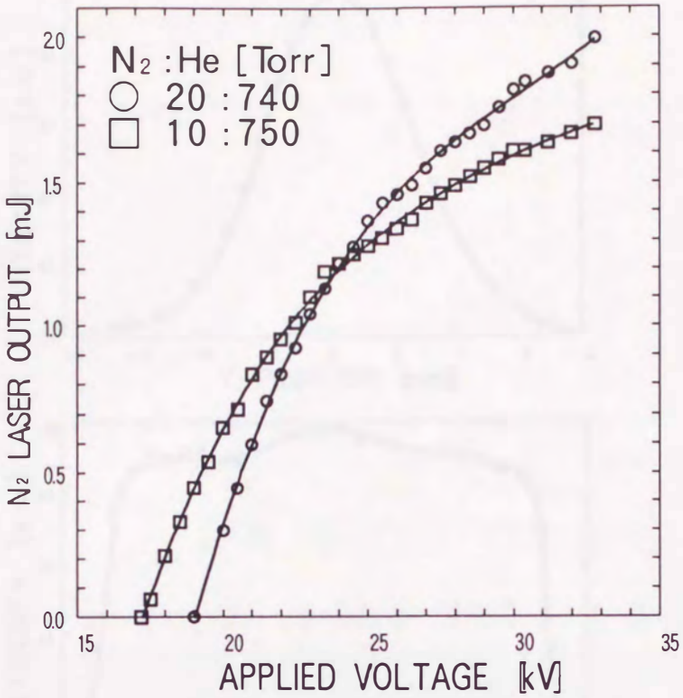


図 2-4: TEA 動作時の N_2レーザー入出力特性.

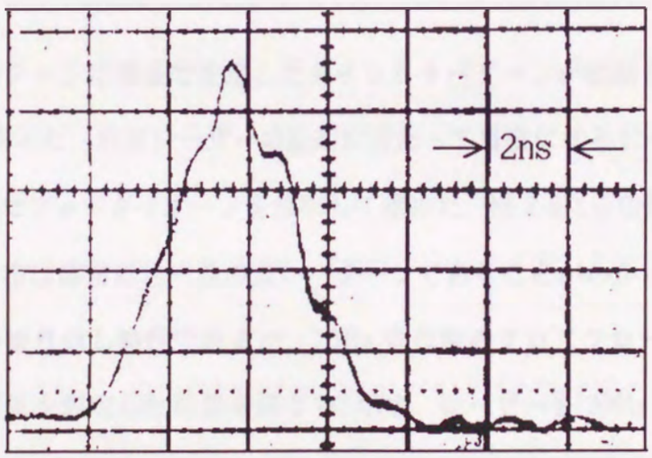


図 2-5: バイプラナー光電管で観測した N_2レーザー波形

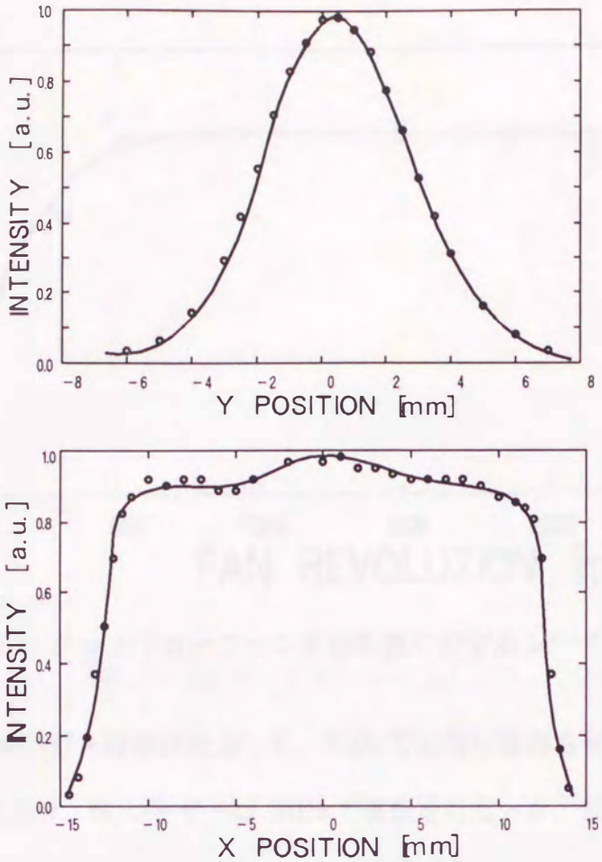


図 2-6: N_2レーザー断面の強度分布（上：上下分布，下：左右分布）

発振のビームパターンは横長で安定したダイレクトパターンが観測され，ビームの寸法は5.4×25mm^{2}であった．色素レーザーの励起に当たって重要になるビーム断面の強度分布はスリットを付けたフォトダイオードを掃引して求めた．図 2-6にその結果を示す．これより得られた強度分布は非常に均一性の良いパターンであることがわかった．

またレーザーの繰り返し特性であるが，20Hz 動作時のクロスフローファンの回転数とレーザー出力の関係を測定した結果を図 2-7に示す．レーザーを 20Hz で動作させた場合，回転数 500rpm 以上で出力は一定になっている．以降の運転では定格を 2000rpm としたが，60Hz までなんら問題なく動作することを確認している．しかし，ガス交換時などに若干放電が不安定になる傾向が見られたため，通常運転は 20~30Hz で行なった．

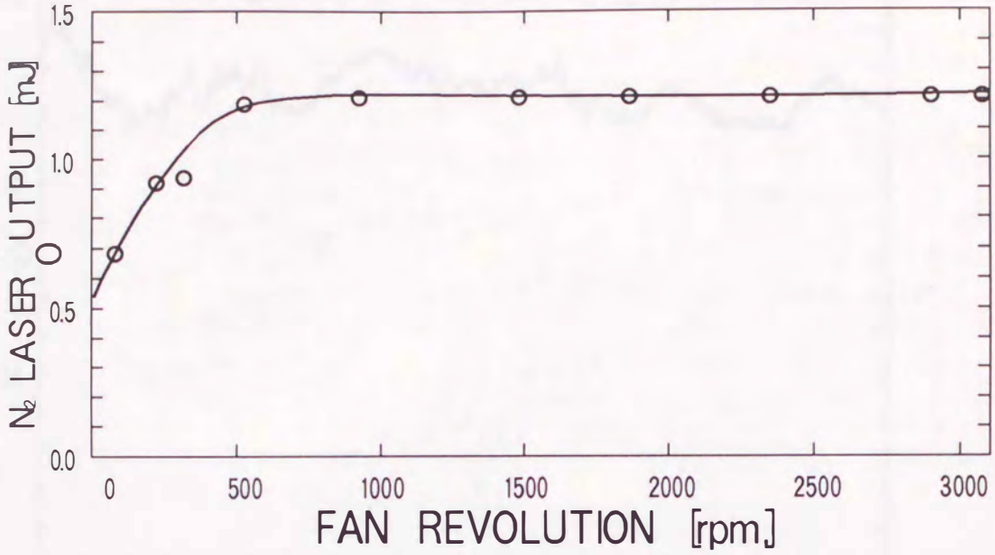


図 2-7: クロスフローファンの回転数に対するレーザー出力変化.

封じ切り運転時のガス寿命試験として，20Hz で定電圧動作させたときの出力エネルギーの変化を図 2-8に示す．N_2レーザーは 20Hz で運転を行なった．最初若干出力が増加した後単調に減少し，300,000 ショットで最初の 75%となった．この図よりガス寿命として出力が 1/2 になるショット数を外挿によって求めると，ガス寿命は 720,000 ショットとなる．

図 2-9は N_2レーザーの出力エネルギーモニター値を 10 パルス毎で平均して，それが一定になるように電源電圧にフィードバックした時の出力と電圧の変化を示している．この時出力は 1.2mJ で一定に制御した．テストを行なった 200,000 ショットの間に電圧は約 1.5kV 上昇している．N_2レーザーのパルス当たりの出力ばらつきに関しては 49頁を参照していただきたい．

コンピューターに設定した上限値を電圧が越えると，ガス補給用とリーク用の電磁弁が開きガスを交換する．これはレーザー動作させながら自動的に行なわれるが，交換中はガス圧が 1 気圧を越えるため出力が低下する．そのため出力を一定に保ちながらスムーズなガス交換を行なうには，ガス圧のオーバーシュートをできるだけ抑えた制御が必要である．

1 回の充填に必要なガス量は約 15ℓであったから，ガスを出力半減期まで使うとすると容

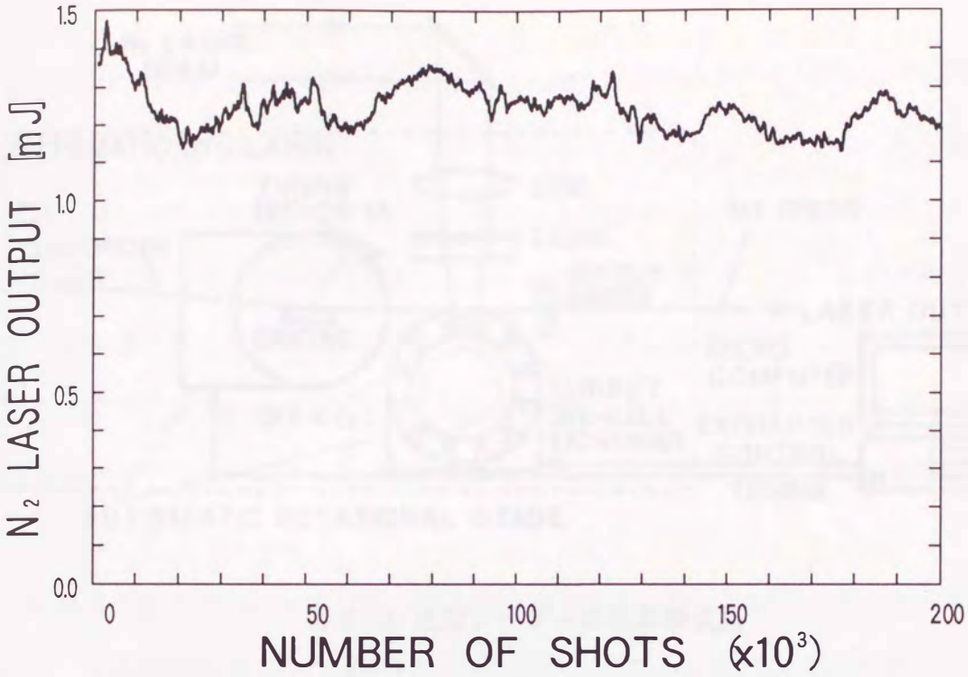


図 2-8: 窒素ガスの寿命試験.

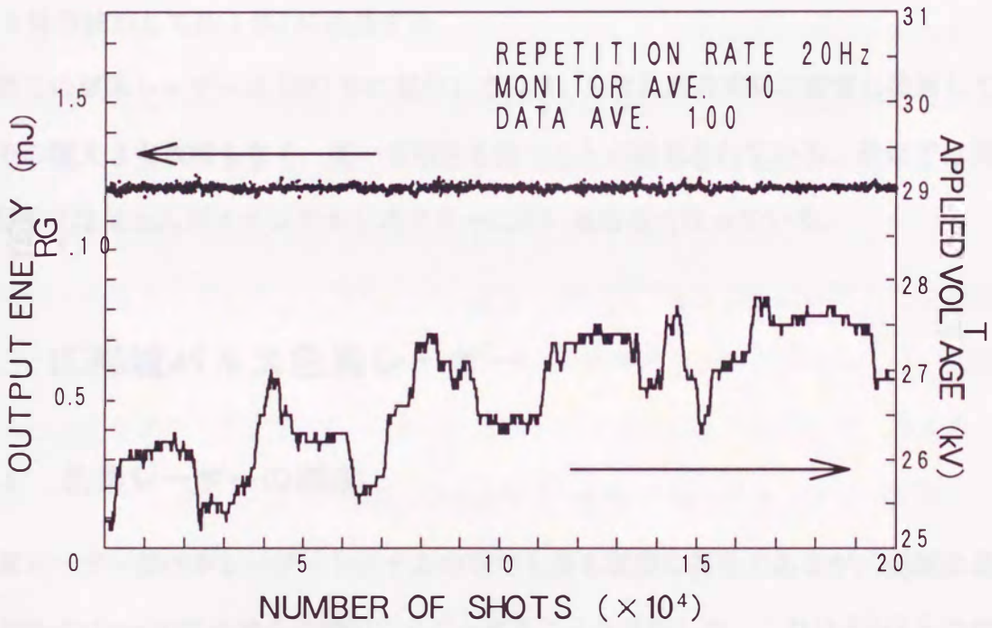


図 2-9: 出力安定を施した場合の，N_2レーザー出力及び電源電圧の変化

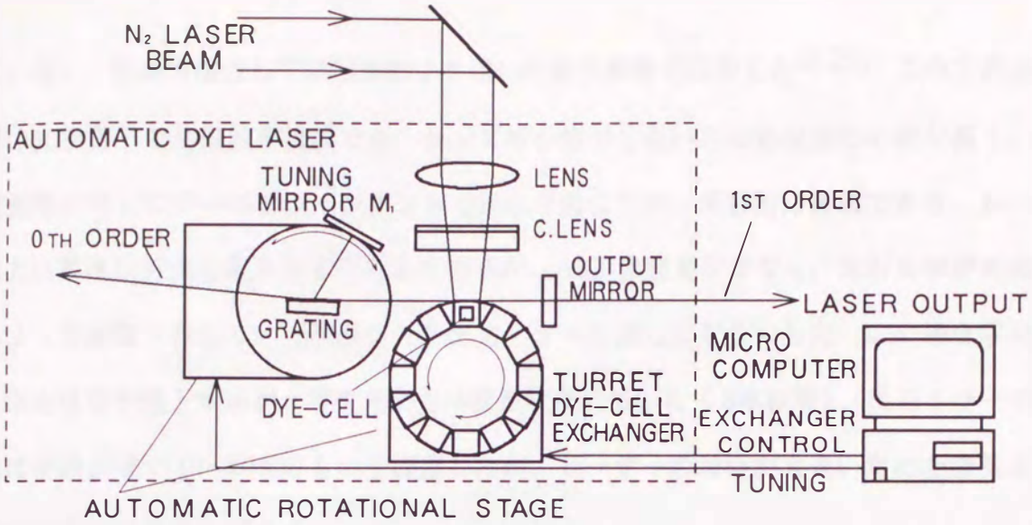


図 2-10: 色素レーザーの基本構成図

量 7000ℓのボンベ一本で 2.45×10^8 ショットが使用できる．これは 20Hz の動作で 3400 時間 (1 日 9 時間使用して約 1 年) に相当する．

実際この窒素レーザーは 1987 年に試作して以来，分光計測の実験に頻繁に使用してきたが，その間大きな故障もなく，高い信頼性を持つことが確認されている．最近では実際に 1 年間程度はほとんどメインテナンスフリーに近い運転を行なっている．

2.3 広帯域パルス色素レーザー

2.3.1 色素レーザーの構成

色素レーザー部は本レーザーシステムの中でも最も重要な部分であるが，発振波長域として 360～740nm の波長域を連続的にカバーすることを目指した．これは SHG との併用で波長域を切れ目無く紫外域に拡大することを考慮している．図 2-10に色素レーザーの基本構成を示す．発振器の励起方式は横励起で，システムの簡略化を図るために増幅段は設け

ていない．同調方法としては回折格子を用いた斜入射型を採用した[20,21]．この方式は最小限の光学素子で共振器を構成でき，レンズ等を使用しないため色収差の心配が無く，広い波長域に対して同一のアラインメントで対応可能なため，本目的に最適である．レーザー出力は零次回折光を取り出すこともできるが，ASE 含有量が少なく，出射光軸が色素交換によって影響されにくい一次回折光を出力ミラーを通して取り出した．この場合零次光より出力は若干低下するが，零次光出力は波長校正に用いた（3章参照）．出力ミラーの反射率は全波長域で 10～20%のものを使用したが，レーザーの利得が大きいため全波長域を一枚のミラーでカバーできる．

自動瞬時交換を可能にするため，色素溶液は循環系を排して石英セルに封じ切る方法を用いた．全波長域をカバーするのに，後に示す（42頁を参照）ように本機では最低で 13 種の色素を必要とした．色素セルの交換機構として本システムではターレット方式を採用した．断面積 $10\times10\mathrm{mm}^2$の石英セル 14 本を直径 130mm の円盤状のテーブルの周上に固定し，円盤を回転させて任意のセルを共振器中に挿入した．セルの端面反射による寄生発振を避けるために，一般に色素セルは共振器の光軸に対してある程度 (本機では 20 度) 傾けて挿入する必要がある．ここでは各セルをターンテーブルに垂直に固定し，そのテーブルを傾けて装置の小型化を図っている．励起レーザーのパルス幅が短いため，共振器長は短いほうが望ましい．ここではターレット方式の交換機構を水平に，同調ミラー駆動機構を垂直に配置することで，色素レーザー全体をコンパクトにまとめた結果，共振器長は約 160mm になった．ターレット回転部及び同調ミラー駆動機構にはステッピングモーター駆動の自動回転ステージ (シグマ光機，KSH-80/KSA-120PM) を使用した．両者の角度分解能はそれぞれ 1/500°, 1/1000°である．

一般に色素を封じ切ると高繰り返し発振が困難になるため，本レーザーでは各セル中に内部撹拌装置（スターラー）を取り付けた．各セル中にスターラーを組み込む場合，セル

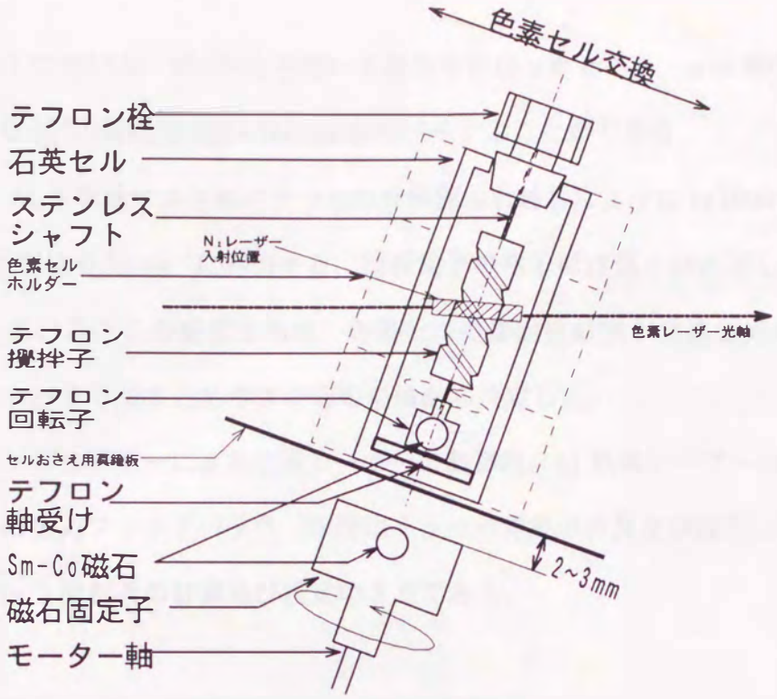


図 2-11: テフロンマグネティックスターラー

の活性部分にできるだけ近く配置して攪拌を行なわないと高繰返し発振時に光軸ずれや出力ゆらぎが生じる．本機では図 2-11に示すような Sm–Co 磁石 (TDK，REC18) にテフロン製の攪拌子を取り付けて，軸受けでセル内に固定したスターラーを製作した．攪拌子の駆動はセルの下方より同様の磁石をとりつけたモーターの回転により非接触で行ない，セルが共振器に挿入された位置にくると中の攪拌子が自動的にまわり始める．

発振波長の同調は回折格子正面の平面ミラー M_1で行なう．この同調ミラーのステッピングモーター制御と前述の色素の交換機構の組合せにより波長設定・変更の自動化が可能となる．回折格子による同調波長λは次式で与えられる．

$$\lambda = \frac{1}{dm}(\sin\alpha + \sin\beta) \tag{2-1}$$

ここで d は回折格子定数，m は回折次数，α, βはそれぞれ回折格子入射角と回折角である．本レーザーでは $d = 2400$ 本/mm のホログラフィック回折格子 (アメリカンホログラフィッ

ク社) を $m=1$ で用いた．式 (2-1) を用いて計算を行なったところ，$\alpha=89°$の斜入射に対し$\beta=-8°$から 52°の範囲で 360~740nm をカバーすることができる．

同調ミラー M_1を駆動する回転ステージの分解能は前述したように 1/1000°で，これは波長 600nm 付近では 0.22cm^{-1}に相当する．回折格子の格子面は図 2-10に示したように現在水平に配置している．この配置方向は，色素セルの端面反射損が垂直偏光の方が小さい，レーザーをコンパクトにまとめやすい等の理由から決定した．

マイクロコンピューターによる色素レーザーの制御は，1) 色素レーザー出力のモニター及び励起源への出力フィードバック，2) 同調ミラーの角度の計算及び設定，3) 色素セル交換器のターレット回転角の計算及び設定の 3 点である．

2.3.2 色素レーザー共振器についての考察

前述したように，本システムではレーザー共振器を再調整すること無しに自動的で瞬時の色素交換を可能にすることを目指した．しかしそのためには，共振器を構成している素子の光学精度及び設定精度などについて注意を払う必要がある．ここでは全波長域にわたり無調整で色素セル交換を可能にするための条件についての検討を行なった．

本色素レーザーシステムの共振器の素子構成を図 2-12に示す．筆者はこの図において矢印を付した素子の動きに対して全て微調を行ない，その設定精度の発振特性に与える影響について調べた．図中で円弧状の矢印は回転を，直線状の矢印は平行移動を表わしている．また，各移動のうちⓗとⓚはステッピングモーターによるもので，あとはすべて手動となっている．この他にセルの光学精度，各色素の種類や濃度による励起光進入の光学深さの変化，溶媒の違いによる屈折率の変化なども，色素交換時の光軸ずれの原因になりうる．ここでは問題を簡単にするために図 2-12のように共振器全体を増幅部と同調部に分けて論じることにする．

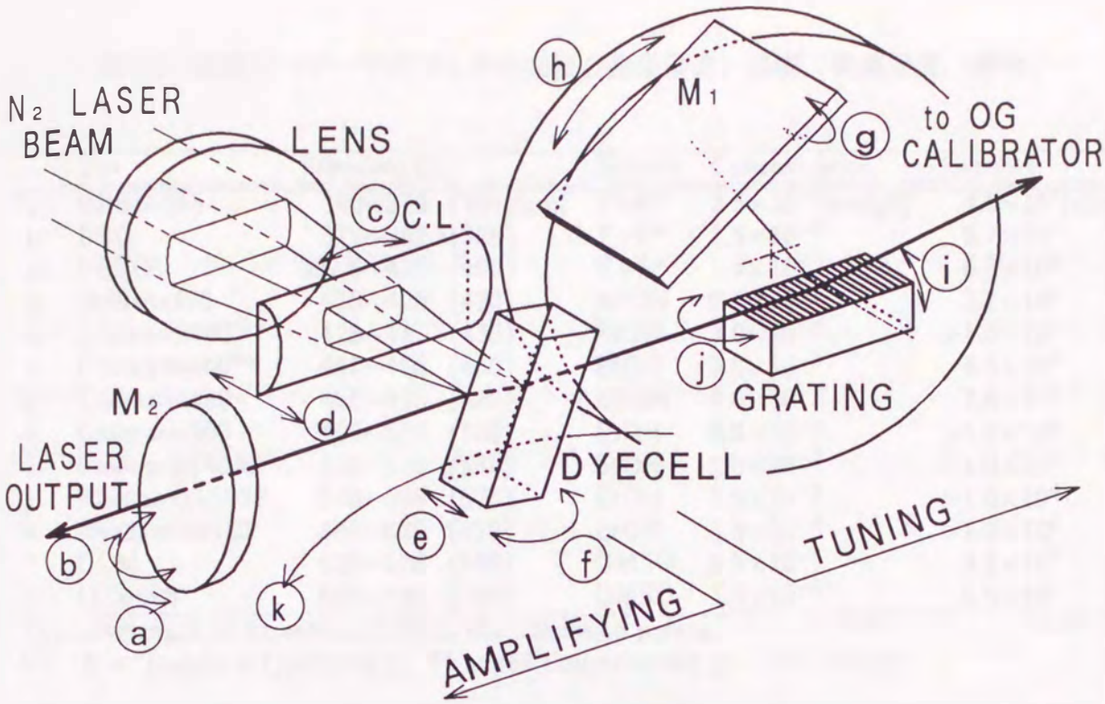


図 2-12: 色素レーザー共振器の構成素子とそのアラインメント

増幅部は出射ミラー M_2及び色素セルで構成され，色素セルの交換に際して最も増幅利得の高い光軸の位置が変化しないように配置される必要がある．目標とする波長域 360～740 nm を連続的に同調するために必要な色素として種々の予備実験の結果，表 2-1に示した 13 種の組み合わせを使用した．同表には各色素の溶媒と濃度も示されている．溶媒と濃度は発振効率と色素交換時の光軸移動の二つを考慮して選ばねばならない．しかし，各色素の励起光に対する光学的深さを一定にすることは困難で，特に大きな吸収断面積を持っている短波長部の色素は浅くなる．この点についてはセル毎にⓔⓕのアラインメント機構を付けて調整することにより，実用上問題ない程度に抑えることができた．また溶媒の屈折率の変化による影響も無視できる程度であった．しかし色素によっては完全に最適な条件に設定できない場合もあった．

色素セルの光学精度は増幅部では最も重要な部分である．共振器の各素子のアラインメ

表 2-1: 色素レーザーで使用した色素及び発振波長，溶媒，最適濃度，寿命

	Dye	Wavelength	Solvent	Concentration	Lifetime
a.	BPBD-365	360～379 (365)[nm]	T+E*	2.5×10^{-3}[mol/ℓ]	4.5×10^{5}[shots]
b.	BBQ	379～392.5(385)	T+E*	1.5×10^{-3}	6.7×10^{5}
c.	PBBO	392.5～415 (400)	T+E*	1.4×10^{-3}	6.3×10^{5}
d.	Stilbene420	415～428 (420)	MtOH	0.7×10^{-3}	3.7×10^{5}
e.	Coumarin440	428～447 (435)	EtOH	3.0×10^{-3}	$>1.0\times10^{6}$
f.	Coumarin460**	447～466 (460)	EtOH	3.0×10^{-3}	4.6×10^{5}
g.	Coumarin480	466～490 (480)	MtOH	6.0×10^{-3}	7.6×10^{5}
h.	Coumarin500	490～525 (500)	EtOH	6.0×10^{-3}	$>1.0\times10^{6}$
i.	Coumarin540A	525～570 (540)	EtOH	1.0×10^{-2}	$>1.0\times10^{6}$
j.	Rhodamine590P	570～596 (575)	EtOH	2.5×10^{-3}	$>1.0\times10^{6}$
k.	Rhodamine610	596～625 (610)	EtOH	5.0×10^{-3}	$>1.0\times10^{6}$
l.	DCM	625～688 (660)	DMSO	2.5×10^{-3}	3.1×10^{5}
m.	LDS-698	688～740 (720)	DMSO	3.5×10^{-3}	5.5×10^{5}

The wavelength in parentheses shows the maximum points.
* T+E = Touluene(7)+EtOH(3), ** added Coumarin440 (5×10^{-4}mol/ℓ)

ントをずらしたときの出力変化から，レーザー発振に影響しない程度の各光学素子のアラインメントの許容範囲は次のように求められた．

1) 出射鏡 M_2について ⓐ は±2′， ⓑ で±15′.

2) 同調ミラー M_1のあおり ⓖ は±1.2′.

3) 回折格子溝の光軸に対する取付角設定精度は ⓙ は±1.5′.

4) 色素セル前面の位置 ⓔ の精度は 0.2mm .

これらの精度条件から，色素セルの光学精度で問題となると思われるのは隣接する側面同士の直角度および対向する端面の平行度である．特に光軸が通る端面対の平行度は重要で，これらは光軸の垂直／水平方向ずれの原因となる (ここではそれぞれ垂直／水平方向の平行度と呼ぶことにする)．水平及び垂直方向の光軸ずれのレーザー共振器に対する影響は，回折格子の配置方向によって変わってくる．ここでは回折格子は水平に配置されているので，光軸の水平方向のずれによってレーザー発振は阻害される．垂直方向のずれは回折格

子の入射角を変動させるだけなので致命的なものではないが，ずれが大きいと光軸が回折格子から外れてしまう．これよりセルに要求される平行度は水平方向が最も厳しく，前述の条件から計算される許容精度は±4′である．

使用するセルに要求される光学精度は以上の通りであるが，本レーザーのように多くのセルを内蔵する場合には，高価な特注セルはコストの面で問題が多い．そこで吸光用に量産されている 10×10×50mm^{3}の栓付き石英セル（旭製作所製）を多数購入し，その平行度を測定した．測定はエタノール又はトルエンを満たしたセルに He-Ne レーザーを通し，そのふれ角θと屈折率 n から，平行からのずれ角

$$\alpha = \theta/(n-1) \tag{2-2}$$

を求めた．その結果 10 個のセル 20 面についての平行度は，垂直方向で$-5.06' < \alpha < 6.31'$，水平方向で$-5.06' < \alpha < 2.53'$の範囲にあった．したがって市販品セルをある程度選別すれば十分使用できることがわかった．

また，光軸位置にはセルの前面の位置 (図 2-12のⓔ) とあおり (同ⓕ)，及びセルの前面と側面の直角度が影響する．励起光で照射されるセル前面の位置は 0.2mm 以下の精度で設定する必要があったが，これは色素毎の光学深さの違いによっても若干変化する事が予想される．またあおりについては±1.2′の高い設定精度が必要なことがわかった．

つぎに同調部に関しては，広い波長域にわたる同調ミラーの動きⓗに対して，光軸ずれが起こらないように設計されなければならない．そのためには，

1) 回折格子の中央がターンテーブルの中心に一致していること．

2) 同調ミラー M_1はどの位置にあっても回折格子の溝に対して常に平行になっていること．

3) 回折格子の溝の向きは光軸に対して正確に直角に設置すること．

が重要である．特に 2) は全波長域で光軸ずれを無視できる程度にするには，±1.5′という

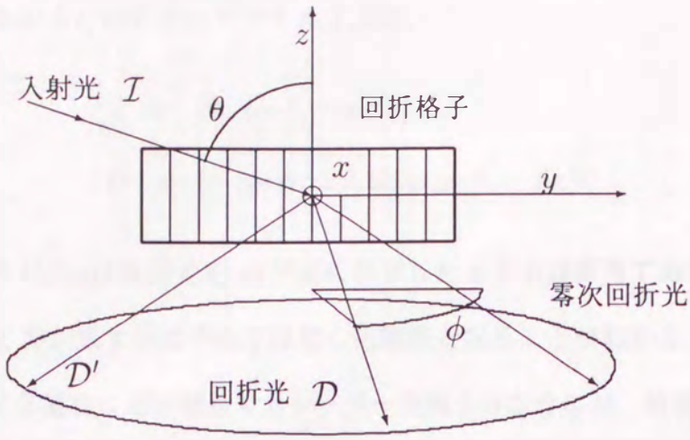


図 2-13: 回折格子に斜めに光軸が入射した場合の回折角

高い取付精度が要求される．これは図 2-12のⓙに相当し，ここには微動装置をつけて入念に調整しなければならない．

しかし，実際に 3) の条件を厳密に満すようにレーザーを調整し，波長 420nm 付近で発振する色素 (Stilbene 420) を用いたところ，同調ミラー M_1の角度とは無関係な波長の寄生発振が見られた．これは式 (2-1) において $m = 2$ で回折角が入射角αと等しくなるような波長λ,

$$\lambda(\alpha) = \frac{1}{d}\sin\alpha \tag{2-3}$$

で起こる．d=2400 本/mm, 入射角$\alpha = 89°$の場合には 416.6nm となり，この波長域でゲインのある色素は，寄生発振でレーザー出力が減少して事実上同調が困難になる．これを避けるには上述の条件 3) をはずし，回折格子の溝の向きを光軸に対して垂直から若干ずらすとスムーズな同調が可能となる．

そこで回折格子と光軸が垂直でない場合にはどのような問題が生じてくるのかを検討してみよう．図 2-13のように回折格子に斜めに入射する光軸を考える．回折格子溝の方向を z, 格子面の法線方向を x として座標軸を定義し，入射光と xy平面の成す角をθとすると

入射方向ベクトルおよび回折方向ベクトル$\mathcal{I}$,$\mathcal{D}$は,

$$\mathcal{I} = (0\,,\cos\theta,\,-\sin\theta) \tag{2-4}$$

$$\mathcal{D} = (-\cos\phi\cos\theta,\sin\phi\cos\theta,\,-\sin\theta) \tag{2-5}$$

のようになる．ただしϕは回折光をxy平面に投影したときの回折角である．これより，波長の変化によって$\mathcal{D}$が成す面は平面ではなく円錐形となることがわかる．このように回折光の方向が変化する場合にどの波長でもレーザー発振を行なうには，同調ミラー M_1の法線方向をその回転面に対してθ傾けることで対応が可能であると思われる．これより条件 3) の代わりに，同調ミラー M_1の回転軸は回折格子の溝に対して平行であるという条件を満たせば良いことがわかった．

その際，同調ミラー M_1の制御に用いる式 (2-1) は次のように修正される．

$$\lambda = \frac{1}{dm\cos\theta}(\sin\alpha + \sin\beta) \tag{2-6}$$

また回折方向ベクトル$\mathcal{D}$はミラー M_1の回転面上に無いため M_1の設定角β'は次の式で表わされる．

$$\beta' = \tan^{-1}\left(\frac{\tan\beta}{\cos\theta}\right) \tag{2-7}$$

これらの式から波長 360~740nm における誤差を見積もると，$\theta = 5°$のときでも 0.7%程度の誤差に過ぎず，波長設定式を修正しなくても粗同調程度であれば充分に可能であることがわかる．

2.3.3 レーザー発振特性

本節では色素レーザーの動作特性について述べる．励起用の N_2レーザーは通常パルス出力 1.2mJ で一定出力になるようにフィードバック制御し，繰返しは 20Hz(最大 60Hz) で実験を行なった．

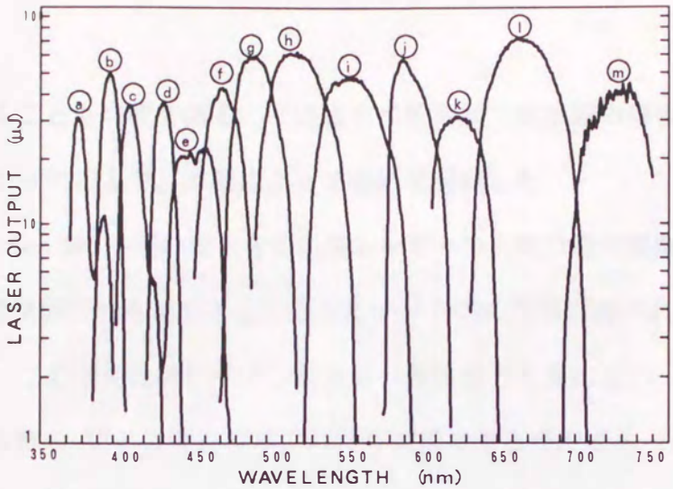


図 2-14: 13 種の色素を用いた本色素レーザーシステムの同調曲線

ⓐ～ⓜ は表 2-1の最左側のアルファベットに対応している

図 2-14は，表 2-1に示した 13 種の色素 (Exciton 社製) について，ターレットによるセル自動交換により無調整で機械的に得た同調曲線の例である．但し，色素によっては図 2-12 のⓒⓓの手動による補正を若干行なっている．全ての色素について，M_1制御用ステッピングモーターの最小ステップ刻みで波長掃引を行ないながら，各波長につき 10 ショット積算・蓄積した色素レーザー出力をコンピューターに記録したものである．図 2-14によれば 361～748nm の波長域で連続的に同調が可能で，大部分の波長域で 10μJ(2.2kW) 以上の出力が得られた．色素の数を増やせば同調曲線の境界での出力低下を更に少なくすることができるであろう．この同調曲線より決定された各色素の分担発振波長域は表 2-1に示されている通りで，これに従ってコンピューターは任意の波長に対して適当な色素を選びだす．

コンピューターは発振波長が入力されると，直ちに適当な色素を選び出すと同時に，同調ミラー M_1を式 (2-1) によって所定の位置に動かして，その波長での発振光を得ることができる．ミラーの移動速度は 360～740nm 間を約 3 秒程度でスキャンする．さらに速くすることも可能であるが，波長設定精度や繰り返し動作での誤差蓄積などの問題からこれ以上速くするのは賢明ではない．通常の波長掃引等は現在の速度で十分である．隣り合ったセルの交換は約 0.5 秒で完了するため，あらかじめプログラムしておけば，全波長域を短時

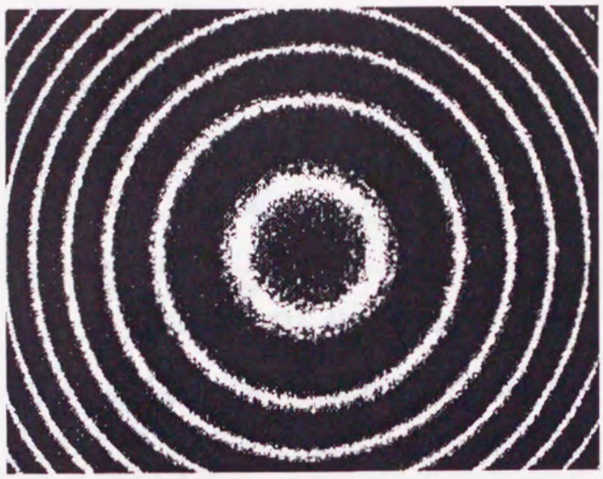
間に連続掃引することも可能である．このように短時間で広帯域の掃引は従来のレーザーでは実行できなかったことで，本機によって初めて実現した．

色素に Rhodamine 590 を用いたときの色素レーザーの入出力最大変換効率は 4.8%であった．回折格子の零次回折光を出力として取り出すと 13%の効率が得られるが，ASE 含有量は 20%台になる．この傾向は特にゲインの大きい紫外域の色素に強い．一次回折光を出力とした場合には本機の ASE は全波長域にわたり無視できる程度であった．

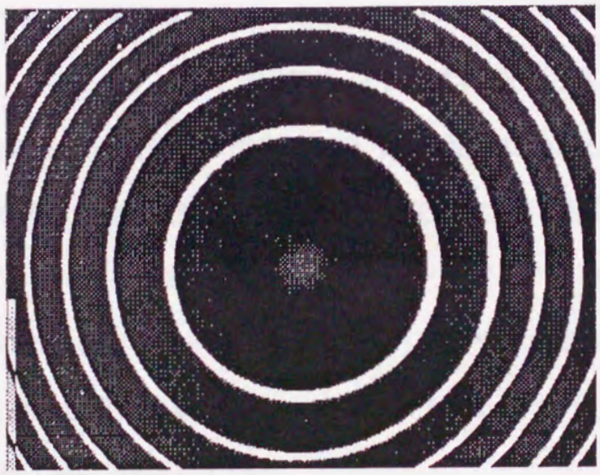
色素レーザーの発振スペクトルを free spectral range(FSR) が 1.7cm^{-1}の Fabry-Perot 干渉計で観測した写真を図 2-15に示す．色素レーザービームの使用した色素は Rhodamine 590，波長は 580nm である．参考のため He-Ne レーザーを用いたものも示してある．斜入射型色素レーザーの発振スペクトル幅は一般に回折格子の入射角によって変化し，入射角を 90°に近づけるほど狭いスペクトル幅が得られることが知られている[20]．本機の場合入射角 89°程度で約 0.4cm^{-1}のスペクトル幅が得られた．原子分光を行なう際の原子のドプラー幅は 0.1cm^{-1}程度であるが，これにはエタロンの追加が必要で，ステッピングモーターによる波長設定分解能が 0.22cm^{-1}でもある点を考慮してこれ以上の狭帯域化は行なわなかった．図 2-14の同調曲線は入射角を約 85°に設定しているため，スペクトル幅は 1cm^{-1}程度に拡がっているであろう．入射角を 88°にすると出力が 50%減少し，同調域も若干狭まった．

図 2-16は 39頁で述べたスターラーの性能を示したものである．スターラーの回転を止めると数 Hz の繰返しから出力が低下し，著しくパルス毎のゆらぎが増大した．それに対しスターラーを定速で運転させると 50Hz まで追従できることがわかる．

図 2-17は Rhodamine 590 色素での出力ゆらぎを示したものである．N_2レーザーは 10 ショット毎に出力平均値をチェックし，この値が一定となるように電源側にフィードバックをかけているため，ショット毎の出力ゆらぎを減少させる効果はなく，長時間の安定性を



(a) 色素レーザー (Rhodamine 590, 580nm)



(b)He-Ne レーザー (NEC GLG5000, 632.8nm)

図 2-15: ファブリーペロー干渉系による干渉リング

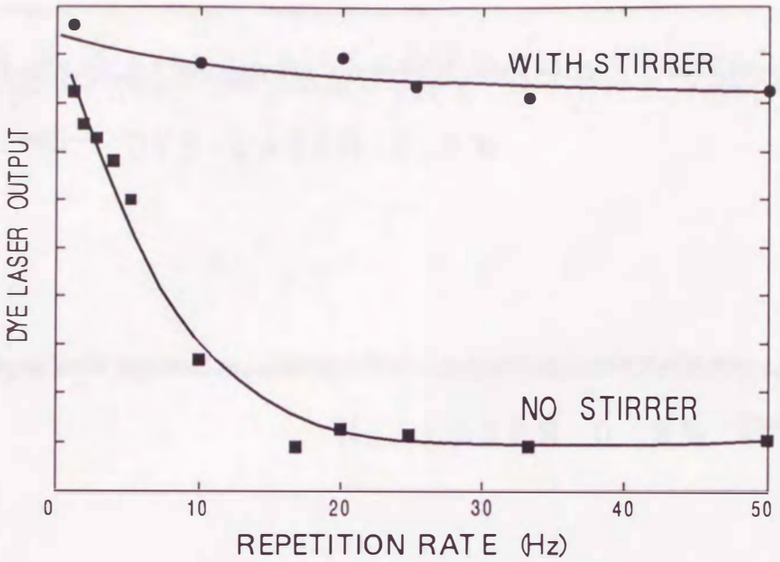
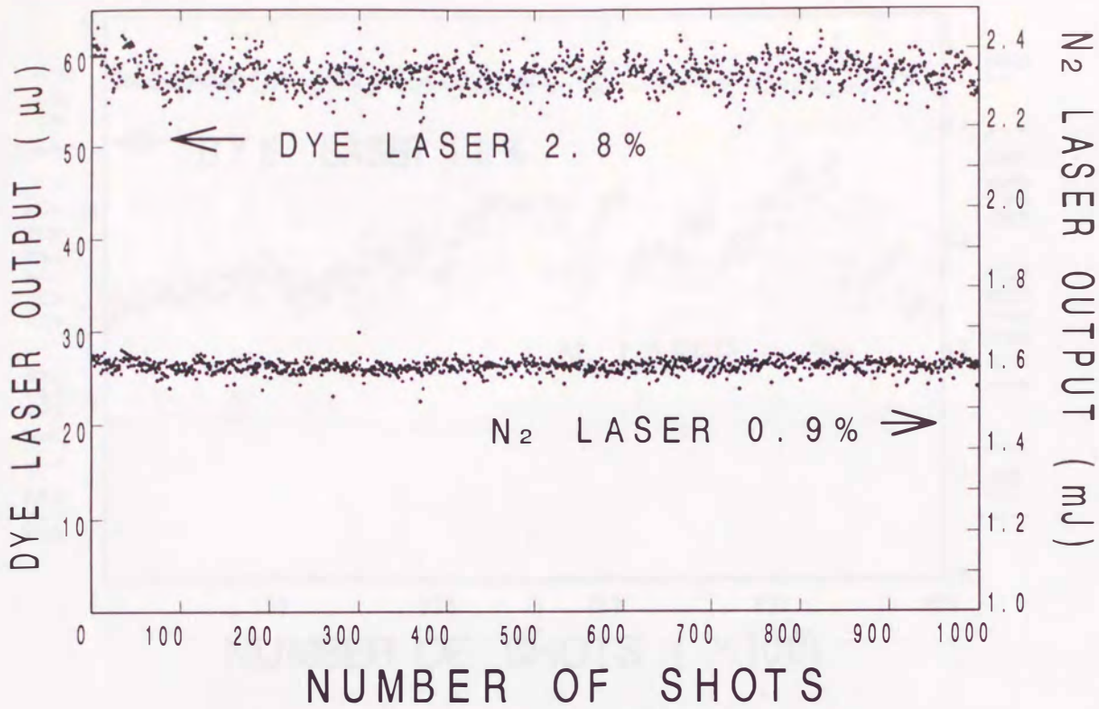


図 2-16: 色素レーザー出力の発振くり返し特性

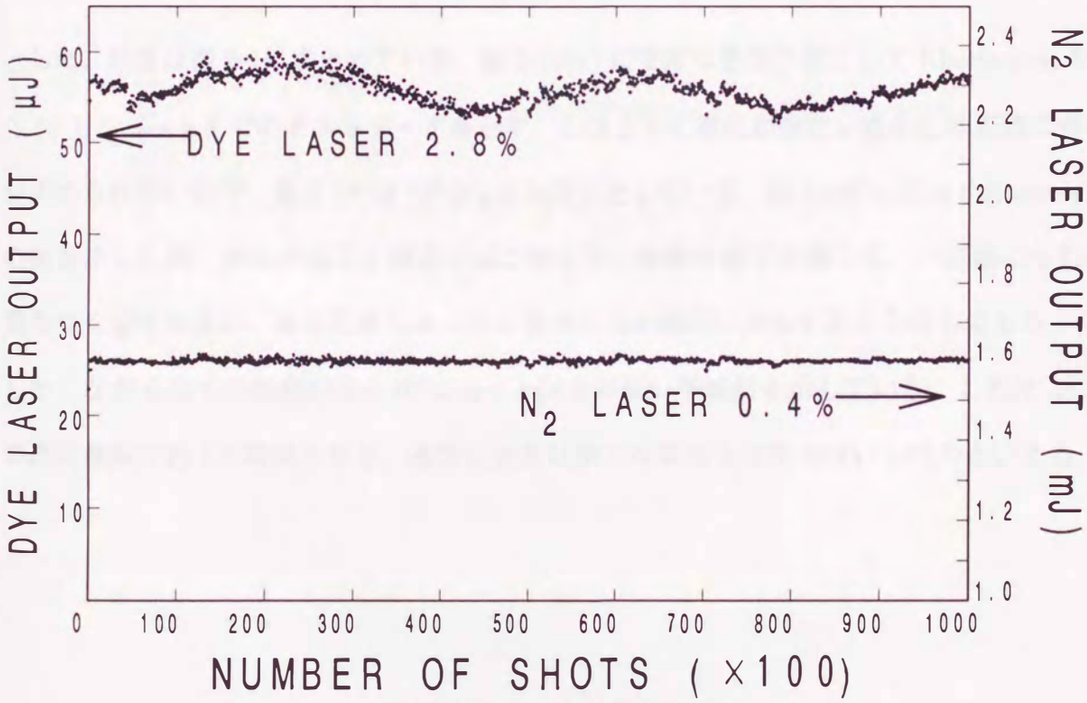
高めている．(a) は単一ショット毎の出力，(b) は 100 ショットの平均出力の変動をプロットしたものである．

それぞれのばらつきの標準偏差を計算すると，単一ショットでは N_2 レーザーで 0.9%，色素レーザーで 2.8%，100 ショット平均では N_2 レーザーで 0.4%，色素レーザーで 2.7%となった．図 2-17に見られるように長時間の運転では出力に周期的変動がしばしば観測され，このため偏差値も増大した．この周期的変動は日によって異なり，原因はまだ定かでない．そこで図 2-18では色素レーザーの側に出力安定化フィードバックを施した場合も示されている．色素レーザーの出力安定化の手法は，励起用 N_2 レーザーの電源に対して直接行なうよりも N_2 レーザー出力の目標値に対してフィードバックするほうがより有効であった．この場合には標準偏差が 1.8%に減少している．

本色素レーザーでは封じ切った色素溶液の量はわずか 3mℓに過ぎない．このため実用的には色素の寿命が短いことが心配されるため，13 種全ての色素について寿命試験を行なった．励起エネルギーを 1.4mJ で安定化させ，繰返し 20Hz で数 10 万ショットの運転を行い，出力変化をプロットした．このカーブから外挿によって出力の半減期を求め，これを色素寿命



(a)1 ショット毎の出力



(b)100 ショットの平均出力

図 2-17: 色素レーザーのショットごとの出力変動

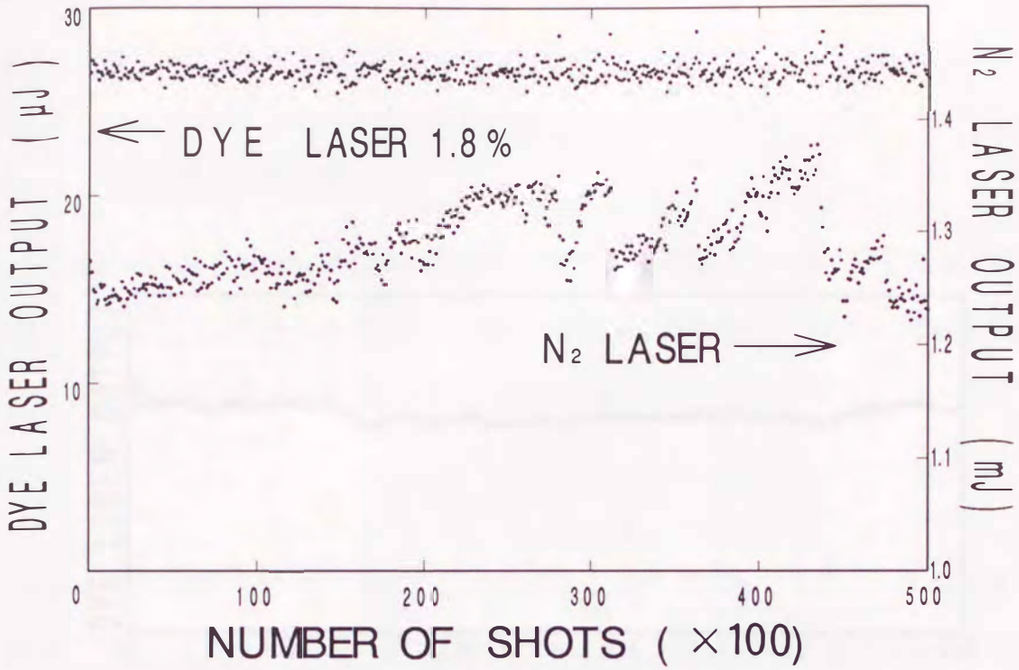
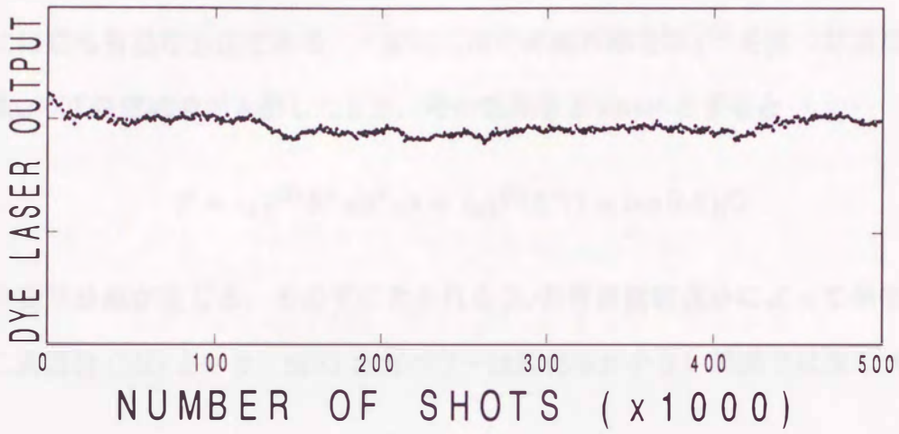
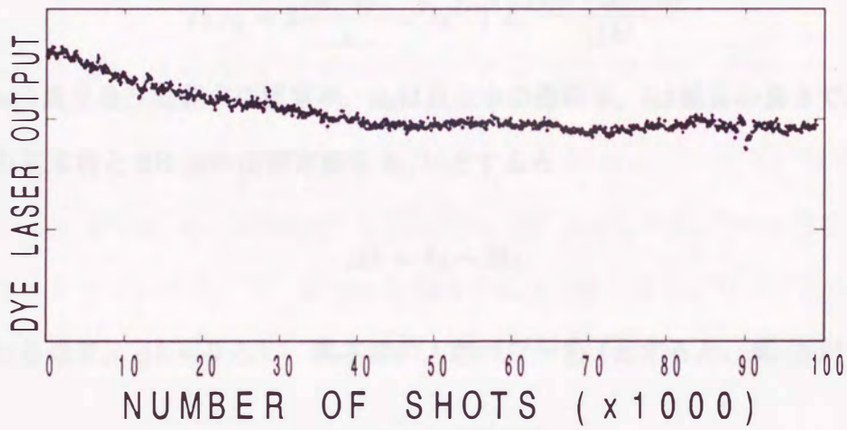


図 2-18: 出力安定化を行なったときの色素レーザーの出力変動

とした．結果は表 2-1にまとめている．図 2-19(a) に安定な色素の例として Rhodamine 610 の 50 万ショットまでのテストデータを示す．このように劣化が少ない場合には正確に寿命が求められないので，表 2-1では 10^6 ショット以上としている．図 2-19(b) には Stilbene 420 の例を示したが，劣化が起こる場合にはこのように初期の低下が激しく，一定値になれば落ちつく場合が多い．また色素によっては最初から直線的に劣化するようなものもあった．しかしながら全ての色素が 3×10^5 ショット以上の長い半減期を示している．これは 20Hz の連続運転で約 1.5 時間となり，通常の分光計測では実用上支障のないレベルといえる．



(a)Rhodamine 610



(b)Stilbene 420

図 2-19: 色素の寿命特性

2.4 第二高調波発生システム

2.4.1 第二高調波発生

非線形光学結晶を用いた第二高調波発生 (SHG) は可視光のレーザーの周波数上昇変換を行なうには最も有効な方法である．一般に二次の非線形感受率$\chi^{(2)}$を持つ非線形媒質中に角周波数ωの正弦電磁波が入射したとき，その電界を $E\sin\omega t$ とすると

$$P = \varepsilon_0\chi^{(2)}E^2\sin^2\omega t = \varepsilon_0\chi^{(2)}E^2(1-\cos 2\omega t)/2 \tag{2-8}$$

という非線形分極が生じる．その中に含まれる 2ωの角周波数成分によって発生する電磁波を第二高調波 (SH) という．SHG 出力パワーは変化率が小さい範囲では次の式で与えられる．

$$I_{SHG} = 2\frac{\mu_0^{1/2}\varepsilon_0^{5/2}}{\varepsilon}\omega^2|\chi^{(2)}|^2E^4\frac{\sin^2(\Delta kl/2)}{\Delta k^2} \tag{2-9}$$

ここで$\varepsilon_0, \varepsilon$は真空及び媒質中の誘電率，$\mu_0$は真空中の透磁率，$l$は媒質の長さである．$\Delta k$は媒質中での基本波と SH 波の伝搬定数を k_1, k_2とすると，

$$\Delta k = k_2 - 2k_1 \tag{2-10}$$

で与えられる量で，$\Delta k = 0$ とし，基本波の入射パワーを Iとすると，式 (2-9) は，

$$I_{SHG} \propto |\chi^{(2)}|^2 I^2 l^2 \tag{2-11}$$

となる．

$\Delta k = 0$(あるいは $k_2 = 2k_1$) にすることを位相整合という．位相整合条件下では，I_{SHG}は式 (2-11) から非線形定数$\chi^{(2)}$, 入射光のパワー, 媒質の長さのそれぞれ二乗に比例して増加する．

この位相整合を達成するには基本波,SH 波に対する媒質の屈折率 n_1, n_2を等しくせねばならない．正常分散性の媒質ではこの条件は満たされないが，結晶の異方性を利用すればこのような位相整合が可能になる．

本装置では非線形結晶としてβ-BaB_2O_4(BBO) 結晶を使った．BBO 結晶は負の単軸結晶であり，位相整合をとるには基本波が常光線，SHG が異常光線となるように配置し，異方性を利用して両者の屈折率が等しくなる方向に結晶軸 zをセットする．その時位相整合角θ_mは

$$\theta_m(\lambda) = \sin^{-1}\sqrt{\frac{(n_o^{\omega})^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}}{(n_e^{2\omega})^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}}} \tag{2-12}$$

で計算される．ここで n_o, n_eは常光線，異常光線に対する屈折率である．

BBO の分散特性は

$$\begin{aligned} n_o &= \sqrt{2.7359 + 0.01878/(\lambda^2 - 0.01822) - 0.01354\lambda^2} \\ n_e &= \sqrt{2.3753 + 0.01224/(\lambda^2 - 0.01667) - 0.01516\lambda^2} \end{aligned} \tag{2-13}$$

で示される[27]．ここでλはμm 単位での波長である．これらから式(2-12)を計算すると図 2-20 のようになる．これによると 260nm での位相整合角を中心にして±17°の角度で 220～360nm の位相整合をとることができる．また波長λ_0の基本波が垂直入射したときに位相整合が取れるように結晶を切り出した場合，任意の波長に対する位相整合のための結晶回転角θを求めると

$$\theta = \sin^{-1}\{(\theta_m(\lambda) - \theta_m(\lambda_0))n_o^{\lambda}\} \tag{2-14}$$

となり，$\lambda_0 = 520$nm となるような結晶では，前述の位相整合角は回転角にして約±30°になる．本装置で使用した BBO 結晶は長さ 7mm，断面は $10 \times 10\text{mm}^2$で，λ_0が約 520nm となるように結晶軸に対して 50°で切り出されているものを使用した．

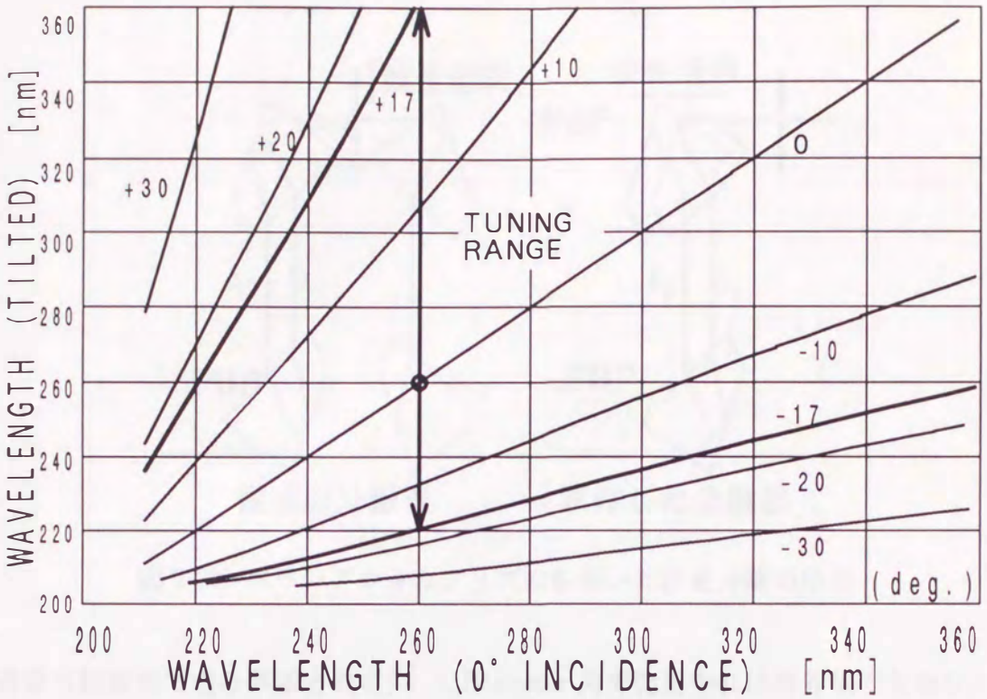


図 2-20: BBO 結晶による SHG の角度位相整合条件

2.4.2 ペランブロッカプリズムを用いた波長分離

SHG 結晶を通過したレーザー光は基本波成分と第二高調波成分を含むため, 状況によってはこれら二つを分離する必要が生じる. これらを分離する方法としては波長フィルターやダイクロイックミラー, プリズムを用いる方法が考えられるが, ここでは 90°定偏角プリズム (Pellin Broca Prism, PBP) 2 個とコンピューター制御を組み合わせた新しいタイプの波長分離器を試作した.

図 2-21に波長分離器の原理図を示す. 左側は従来の市販の色素レーザーに良く用いられている分離器で, 右が本分離器の構成である. 従来の分離器は 4 つの PBP で構成されており, 第 2, 第 3 プリズムの間のスリット位置を調整することで波長分離を行なうのに対して, 本分離器は 2 つの PBP によって構成され, 第 2 プリズムの位置を調整することで波長分離を行なう. これら PBP を用いた分離器の特長は 1) 分離可能な波長範囲が広い (プリズ

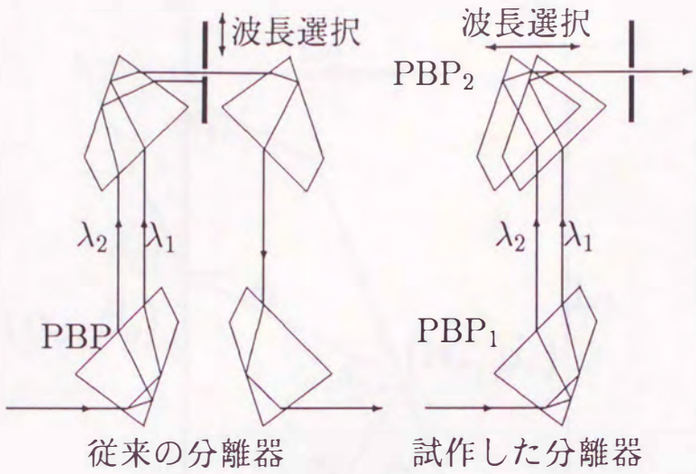


図 2-21: ペランブロッカプリズムを用いた波長分離の原理

ムの透過可能波長でのみ制限される)，2)Brewster 角で使用すれば紫外域でも吸収・反射によるロスが少ない，3) 分離後の光軸方向が波長によらず一定である等が挙げられる．さらに本分離器では 4)PBP の数が半分であるため吸収・反射による損失がより少ない, 5) 小型の PBP で波長分離性をあげることができる，6)BBO 結晶位相整合時に起こる光路のシフトを補正することができる等の利点がある．

次にこのシステムで波長分離を行なう場合の第 2 プリズムの必要移動量，及び反射損失を計算で見積もった．図 2-22に PBP 内の光路モデルを示す．入射角をθ_{in}とし，入射点, 反射点, 出射点をそれぞれ (α_i, β_i),(α_r, β_r),(α_o, β_o) とすると, 光路を表わす各パラメータは,

$$\theta_a = \sin^{-1}(\sin\theta_{in}/n) \tag{2-15}$$

$$\theta_b = \theta_1 - \theta_a \tag{2-16}$$

$$\theta_c = \theta_a + 2\theta_b - \pi/2 \tag{2-17}$$

$$\theta_{out} = \sin^{-1}(n\sin\theta_c) \tag{2-18}$$

$$\alpha_r = \frac{L_1\tan\theta_1\tan\theta_a + \alpha_i}{1+\tan\theta_1\tan\theta_a} \tag{2-19}$$

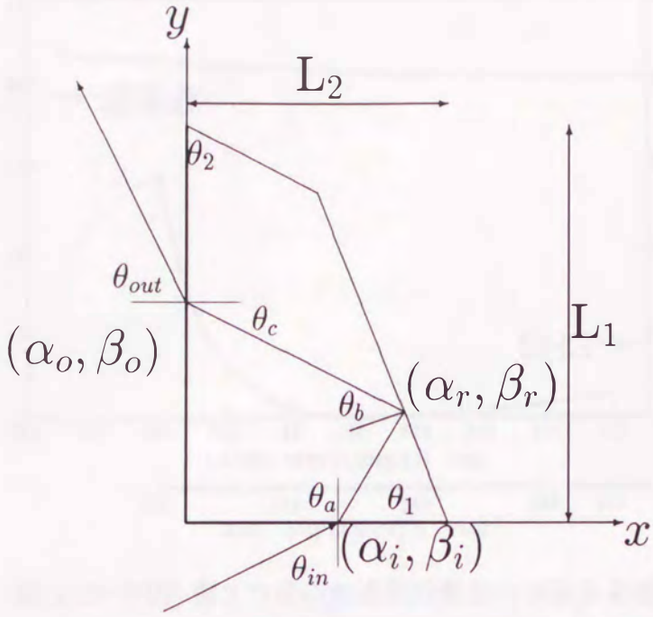


図 2-22: ペランブロッカプリズム内の光路計算

$$\beta_r = \frac{\alpha_r - \alpha_i}{\tan\theta_a} \tag{2-20}$$

$$\beta_o = \beta_r - \frac{\alpha_r}{\tan(\theta_1 + \theta_b)} \tag{2-21}$$

の関係を持つ．ここで n はプリズムの屈折率，L_1, L_2,θ_1,θ_2は図に示したプリズムのパラメータである．この式から 1 個の PBP を通過したσ,π-偏光の反射損失 R_σ,R_πを求めるとフレネルの公式より，

$$R_\pi = 1 - \left\{1 - \frac{\tan^2(\theta_{in} - \theta_a)}{\tan^2(\theta_{in} + \theta_a)}\right\}\left\{1 - \frac{\tan^2(\theta_c - \theta_{out})}{\tan^2(\theta_c + \theta_{out})}\right\} \tag{2-22}$$

$$R_\sigma = 1 - \left\{1 - \frac{\sin^2(\theta_{in} - \theta_a)}{\sin^2(\theta_{in} + \theta_a)}\right\}\left\{1 - \frac{\sin^2(\theta_c - \theta_{out})}{\sin^2(\theta_c + \theta_{out})}\right\} \tag{2-23}$$

となる．本機では基本波光と SHG 光の偏光方向が直行しているので，出力の小さい SHG 光の反射損失を抑えるためπ偏光で入射するように PBP を配置するのが望ましい．図 2-23 は入射角を波長 260nm の Brewster 角としたときの基本波及び SHG の本分離器における反射損失である．これより SHG の反射損失は非常に小さく全波長域にわたり 0.5%以下で

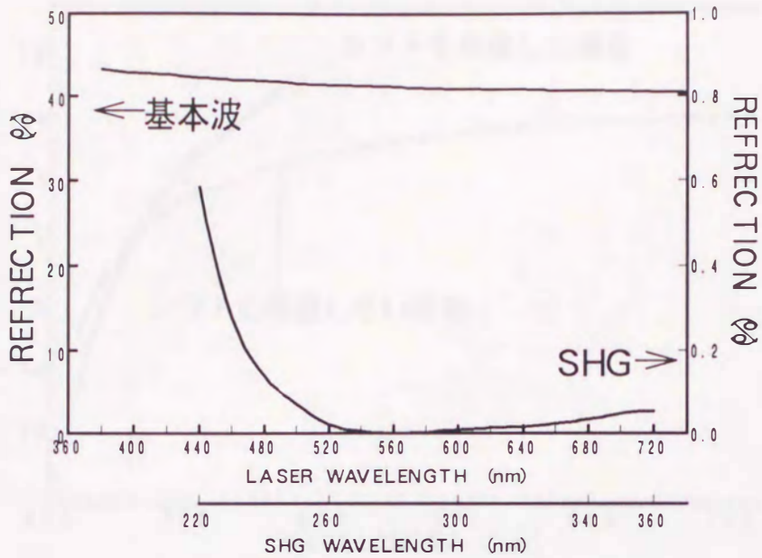


図 2-23: PBP を 2 つ用いた波長分離器による反射損失

あることがわかる．これは通常の紫外透過フィルターなどと比べて非常に小さい損失である．基本波に対しては最大で 45%近い損失があるが，実際には SHG 光強度と基本波のそれには 10 倍近い開きがあるので，ここでは SHG 光の低反射損失の方を優先する．

1 つめのプリズム (PBP_1) で分散した基本波・SHG は 2 つめのプリズム (PBP_2) によって選択されるが，この時の PBP_2の位置は光路追跡によって計算することができる．実際のレーザービームには太さがあるため，本分離器の場合には 2 つの PBP の間の光路長 l をある程度長くしないと基本波と SHG を完全に分離することができない．そこで距離 lを 100mm に設定して計算を行なった結果を図 2-24に示す．実線は BBO 結晶の角度変化による光路シフトを考慮しない場合で，点線は光路シフトの補正も行なった場合の設定位置を示す．但し，波長 360~440nm では SHG を行なわないため光路シフトはないものとしている．これより PBP の移動量は全波長域にわたり約 30mm 程度で，短波長域で大きく変動することがわかる．また分離される基本波・SHG に対するそれぞれの選択位置間の距離は 4mm 以上であり，$l = 100$mm の光路長で充分に分離が可能である．

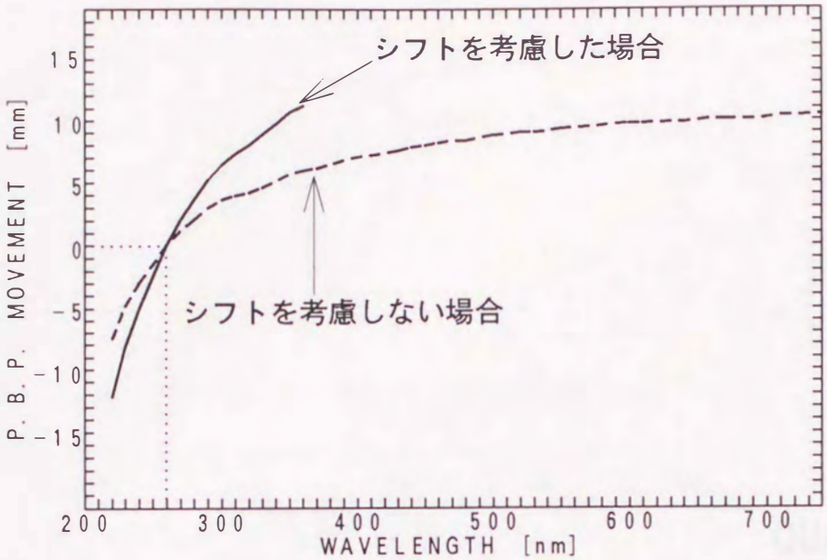


図 2-24: 波長分離器の透過波長に対する第 2PBP の位置

(260nm の場合を 0 点としたときの第 2PBP の相対移動距離)

2.4.3 SHG システムの構成

図 2-25に SHG システムの構成図を示す．システムは SHG 部と波長分離器の 2 つで構成されており，SHG 部は集光用レンズ及び位相整合用回転ステージ，BBO 結晶 (アスカル，$10 \times 10 \times 7t\mathrm{mm}^3$) からなっている．SHG 変換効率をあげるため基本波はレンズで集光されるが，本システムでは入射光の波長範囲が広いので色収差が生じない色消しレンズ (シグマ光機，DLB-20-100, 20mmϕ, $f = 100$mm) を用いている．基本波は鉛直方向に偏光しているため，BBO 結晶を水平方向に回転させることで位相整合をとり，2 つの PB プリズムは水平に配置されている．位相整合を取るために用いたステッピングモーター駆動の自動回転ステージ (Optec，PF-50) は分解能が 1/500°であり，位相整合を取るには充分な精度を持っている．

BBO 結晶を通過したビームを平行に戻すためには再び色消しレンズを用いた方がよいが，紫外域から近赤外域までカバーできるものが入手できないため，ここでは $f = 150$mm

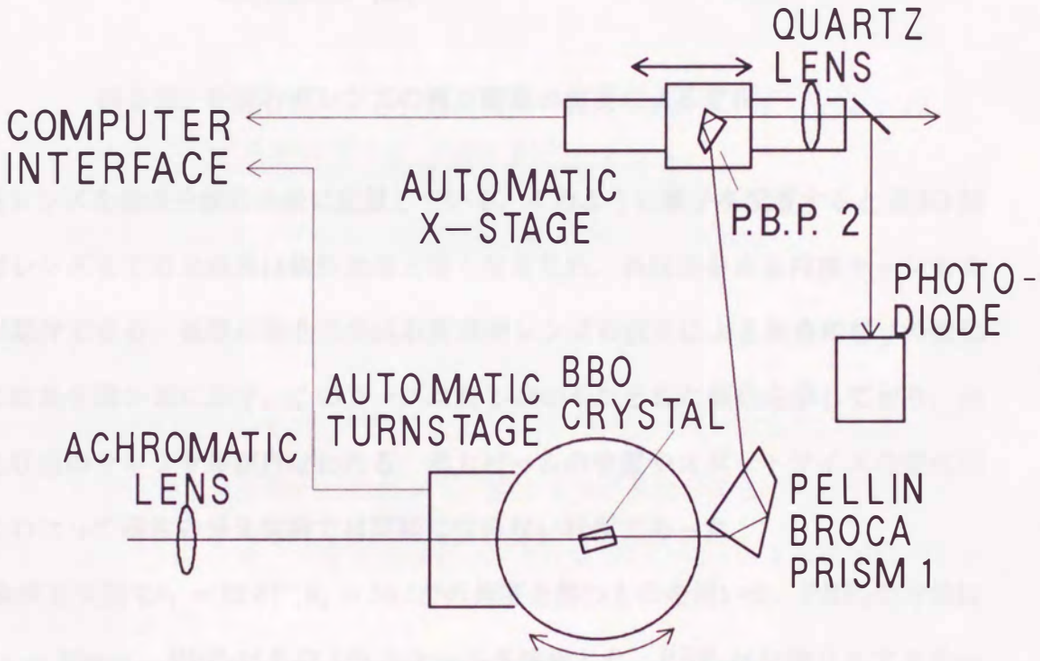


図 2-25: SHG システムの構成図

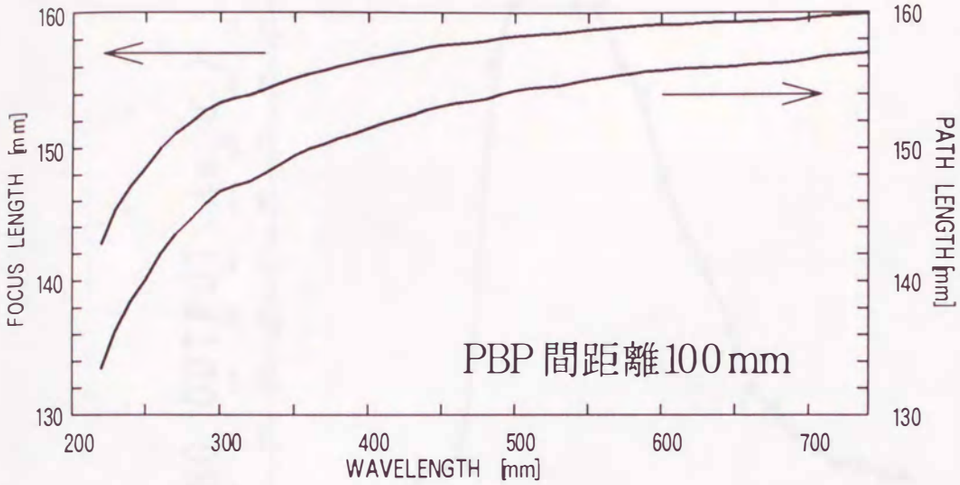


図 2-26: 合成石英レンズの焦点距離の波長による変化

の合成石英レンズを波長分離器の後に配置している．このように素子を配置すると BBO 結晶から出射レンズまでの光路長は紫外光ほど短くなるため，色収差をある程度キャンセルする効果が期待できる．実際に両凸の合成石英球面レンズの波長による焦点距離 f の変化を計算した結果を図 2-26に示す．このカーブは図 2-24のそれと似た傾向を示しており，ある程度の色収差のキャンセルが行なわれる．出力ビームの位置やスポットサイズの変化は全波長域にわたって通常の分光実験では問題にならない程度であった．

PBP は合成石英製で$\theta_1 = 78.87°, \theta_2 = 56.13°$の角度を持つものを用いた．$PBP_1$の寸法は $L_1 = 30, L_2 = 50$mm，PBP_2はその 1/3 スケールを採用した．PBP_2は自動リニアステージ (Optec, PS60-30X) に固定され，出射ビーム方向に平行移動できる．リニアステージの設定分解能は 0.5μm で本目的には十分な精度を持っている．BBO 結晶を保持する回転ステージ及び PBP_2を平行移動させるリニアステージは，制御コンピューターにより色素レーザーに設定された波長に応じて制御され，SHG 光を波長掃引することも可能である．

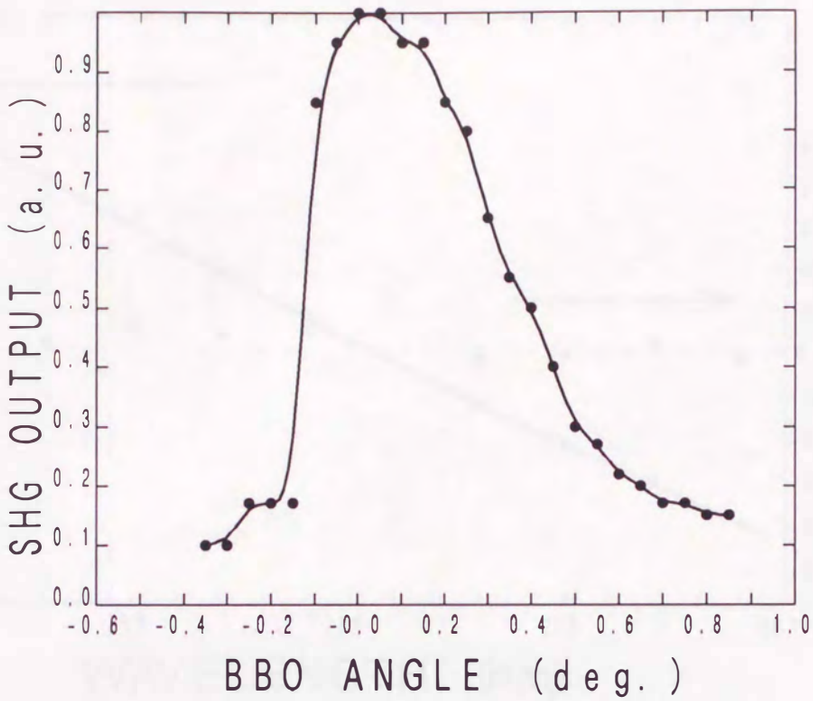


図 2-27: 位相整合角からの角度偏差に対する SHG 出力変化

2.4.4 SHG 特性

本機の位相整合法は式 (2-14) を用いた計算による SHG 位相整合角の設定と，実際の SHG 出力をモニターしてその出力が最大になるようにする 2 つの方法が可能で，それぞれのソフトウェアを内蔵している．そこでまず計算のみによる位相整合によってどの程度の設定精度が得られるかを調べてみた．

位相整合角からの角度偏差に対する SHG 出力変化を図 2-27に示す．プロファイルが左右対称になっていないが，これは主に色素レーザービームの形がセルの奥行き方向に対して非対称であるためである．回折格子の向きを変えて基本波を垂直方向に偏光させたときはこのプロファイルは左右対称になった．図 2-27より角度偏差が±0.2°の範囲では最大出力の 80%以上の SHG 出力を得られることがわかる．図 2-28は波長毎に SHG 出力をモニターして決定した最適な位相整合角を求め，その実測値と式 (2-14) による計算値の差をプロッ

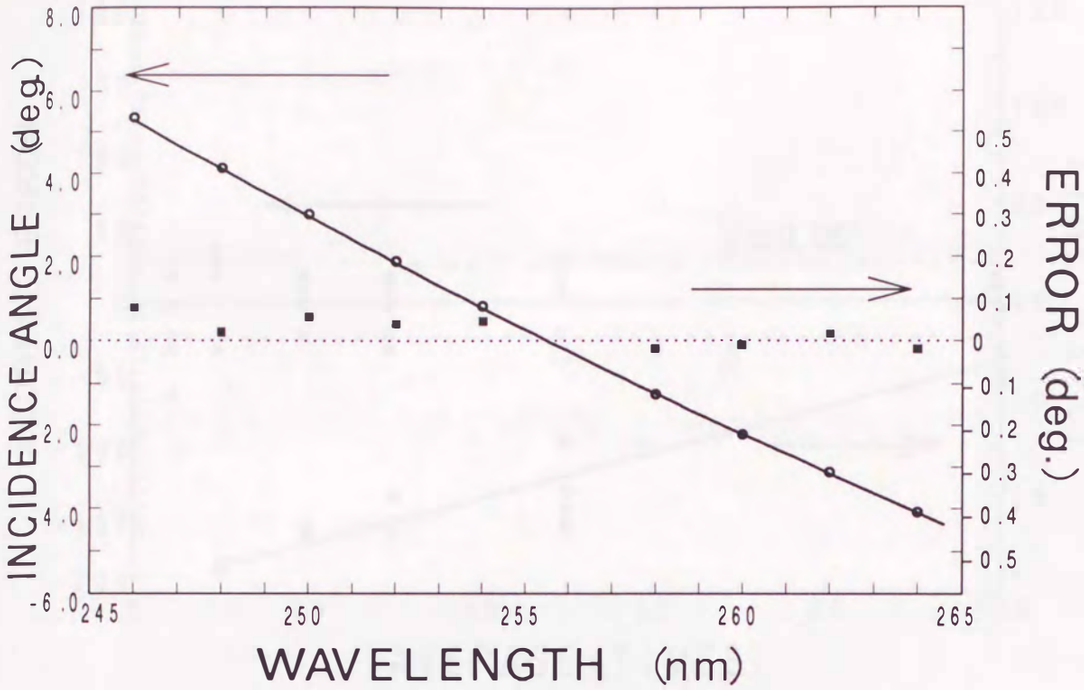


図 2-28: 実験による位相整合角と計算値からの誤差

トしたものである．実線は式 (2-14) によるもので，これより全波長域にわたって設定誤差は±0.2°以下であった．よって計算による位相整合だけでも全波長域にわたり充分な SHG 出力を得ることができると思われる．

つぎに SHG 出力をモニターして自動的に位相整合をとる場合であるが，これはつぎのような手順をとる．

1) 計算により位相整合角を求め，その角度に BBO 結晶を設定する．

2) SHG 出力をフォトダイオードによりコンピューターに取り込み，平均化処理を行なう．

3) SHG 光を確認したら，結晶角度を変化させて SHG 出力のプロファイルを取得する．

4) 取得したプロファイルのピークを検出しその角度に BBO 結晶を設定する．

このような操作を行なうプログラムコードによりテスト処理を行なった結果を図 2-29に示す．信号の平均化のための積算数を増やすと所要時間は増大するが，ばらつきの少ないプ

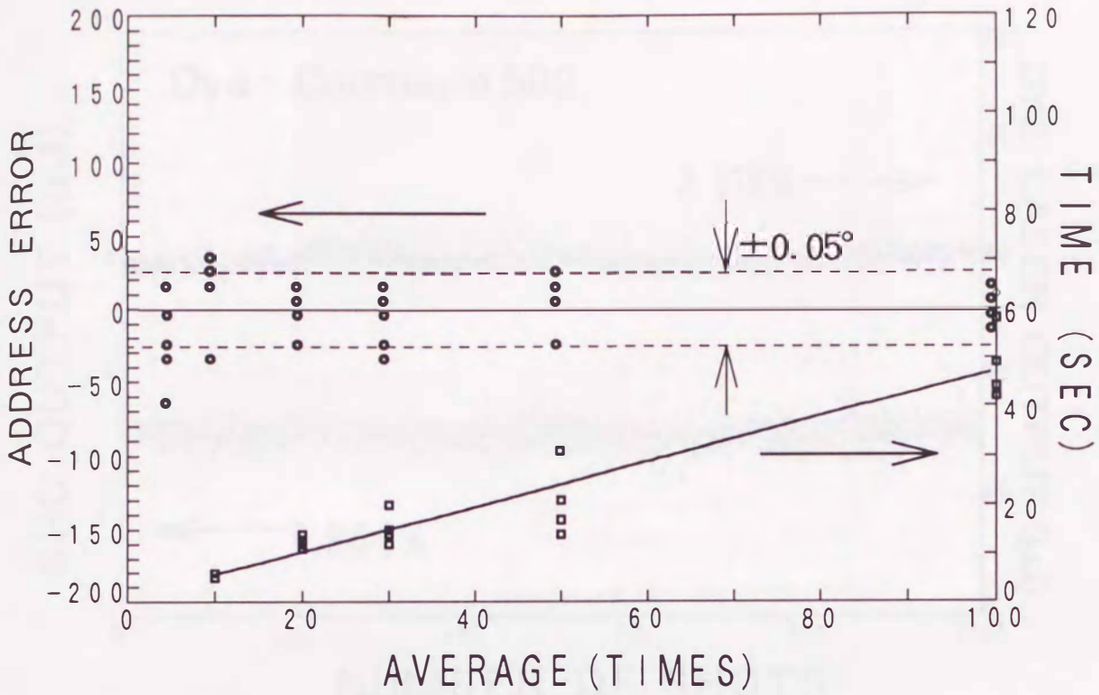


図 2-29: 位相整合をフィードバックで行なった場合の精度及び所要時間

ロファイルを得ることができ，正確な出力ピークを検出できる．この結果より 20 回以上の積算ではかなり正確にピークを検出でき，その時の所要時間は約 11 秒であった．

同一の色素の可変波長域では同調ミラー角度と BBO 結晶角度を計算式にしたがって同時に駆動することによってスムーズな同調が得られた．しかし色素を交換した場合には発振波長の絶対値が，式 (2-1) から求められる値からずれるため，位相整合角を計算によって求めることが困難となった．従って，SHG 領域で色素を交換する場合のみは，若干時間がかかるが後者の自動位相整合設定ルーチンを利用する必要がある．

図 2-30に基本波及び SHG 光強度のパルス毎のばらつきの一例を示す．SHG 光強度は 2 乗特性のために基本波よりもばらつき，1 ショットごとのばらつきの標準偏差は基本波・SHG でそれぞれ 2.5%,7.0%程度である．また 100 ショット毎にばらつきでは，SHG 光でも 2.2%という小さい値を示している．

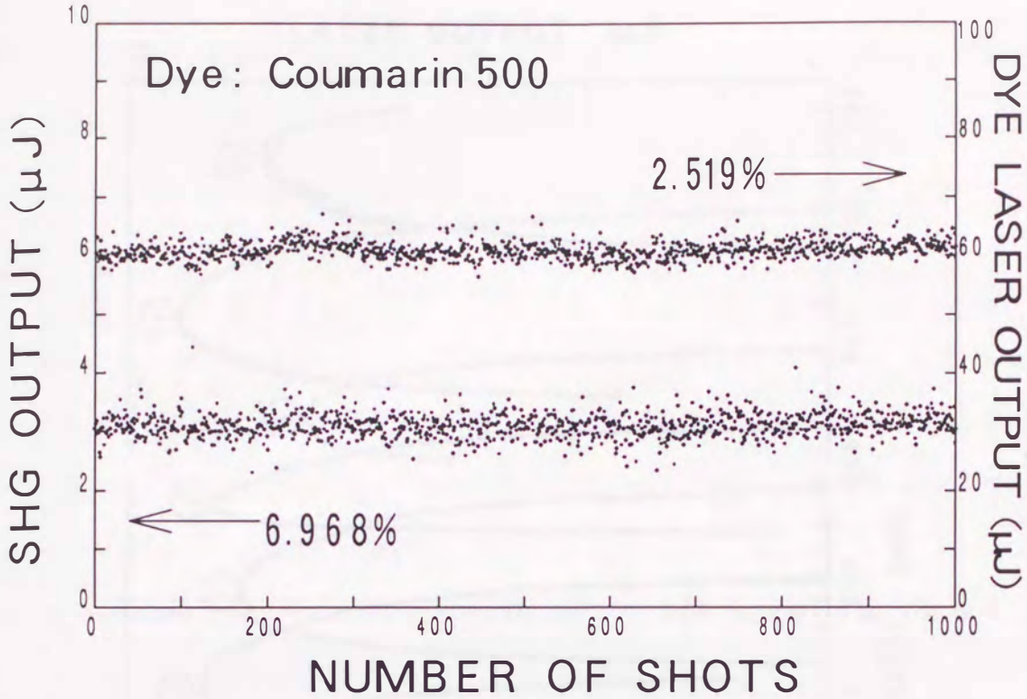


図 2-30: SHG のショット毎の出力変動

図 2-31に本システムで得られた基本波・SHG 光の同調曲線を示す．この同調曲線は各色素について一点で位相整合をとった後，式 (2-14) を用いた計算のみで BBO 結晶を制御して得られたものである．この同調曲線からわかるように 220nm から 360nm までのほとんどの領域で連続した SHG 光を得ることができた．しかし一方，SHG 光の二乗特性のため同調域は基本波のそれに比べ狭くなりがちであることに加え，同調域の一部で位相整合がわずかに外れるために SHG 光の出力が若干低下してしまうことがあり，そのため各色素の境界ではある程度の出力の低下が見られる．このような領域を除けば SHG 光強度はほとんどの領域で 2μJ を上回り，変換効率は 7%程度であった．

以上のシステムは 1 台のマイクロコンピューターにより同時に管理される．従って，220nm から 740nm の間の任意の波長をキーボードから入力すると，即座に出力をその波長に設定する．また適当にプログラムすると，同調ミラー，位相整合角及び波長分離器を同時に制

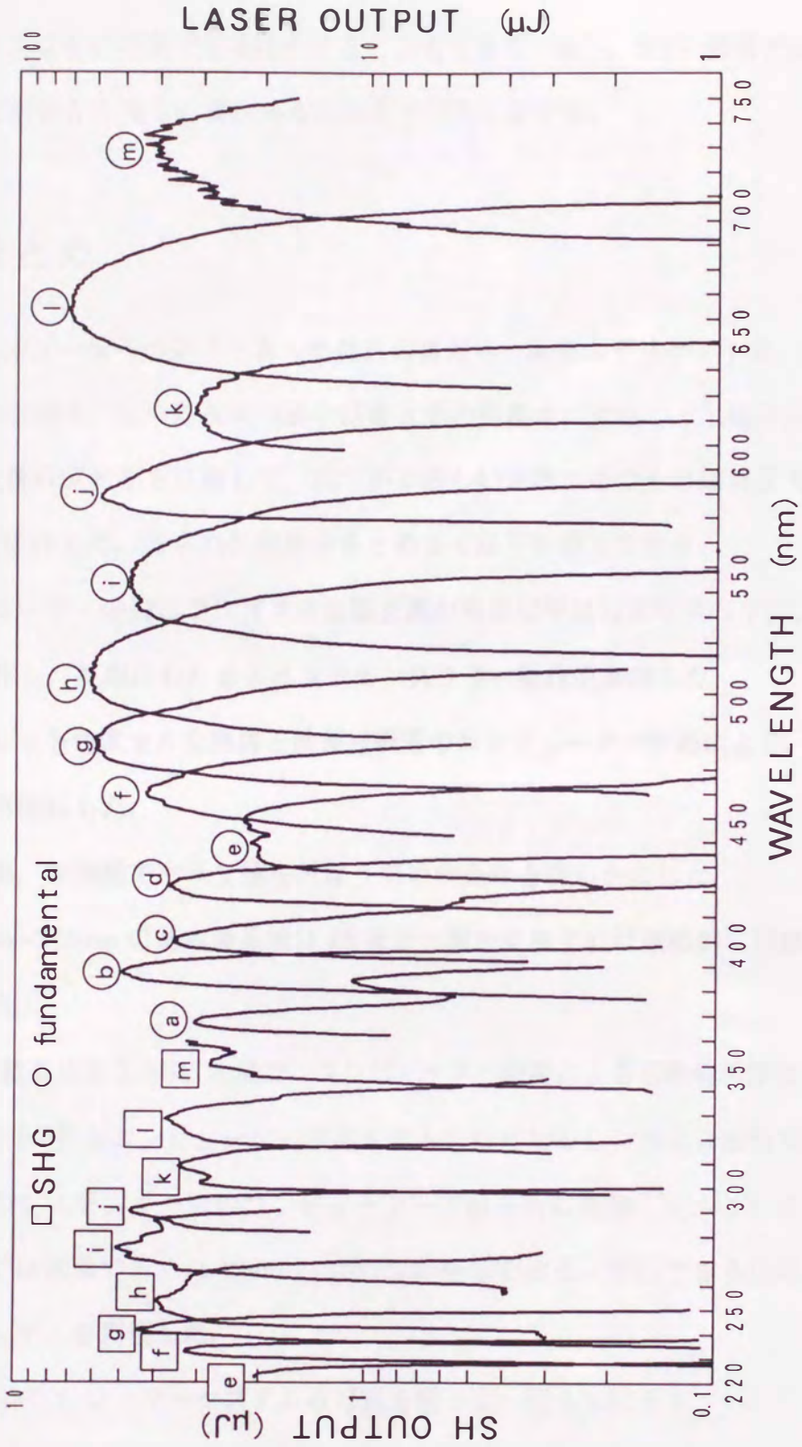


図 2-31: 自動位相整合を用いて得られた 220~740nm にわたる同調曲線

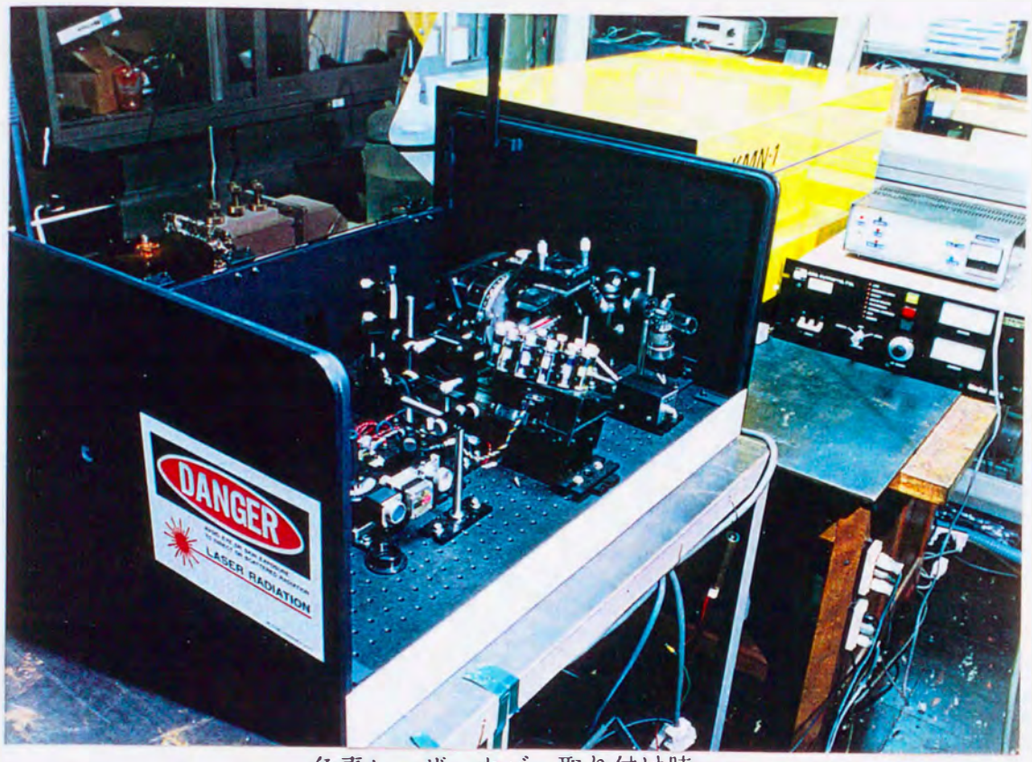
御して全波長域を短時間で連続掃引することもできる．但し，SHG 領域では色素を変える毎に自動位相整合を取る必要があるため若干時間を要する．

2.5 まとめ

従来の色素レーザーの弱点であった操作の複雑さ，調整のデリケートさ，信頼性の低さ，色素交換の面倒さ，広い波長域同調の困難さ等の問題点に対処し，工業分光計測機器に組み込める波長可変光源を目指して，幾つかの新しい発想に基づく自動波長可変パルス色素レーザーを試作した．得られた結果をまとめると以下の通りである．

1) 色素レーザーの励起用にガスの自動交換が可能な準封じ切り式の TEA 窒素レーザーを試作し，長期にわたるメインテナンスフリー動作を実現した．
2) ターレット色素セル交換器と波長同調器のコンピューター制御により，瞬時の色素交換を可能にした．
3) その際，無調整でセル交換を行なうための条件を明らかにした．
4) 360nm～740nm の基本波長域は 13 種の色素を交換すれば連続的に同調できることを示した．
5) BBO 結晶による SHG 装置で，コンピューター制御による自動位相整合を可能にした．
6) 2 個の PBP とコンピューター制御を組み合わせた新しい波長分離器を試作した．
7) 以上のシステムを一台のコンピューターで総合的に制御して，これまでの色素レーザーでは困難であった 220nm～740nm の任意の波長に即応できる広帯域自動波長可変レーザーを実現した．

最後に試作したレーザーシステムの写真を図 2-32～図 2-35に示す．



色素レーザーカバー取り付け時

色素レーザーカバー取り外し時

図 2-32: レーザーシステムの外観

(奥が N_2 レーザー，手前が色素レーザー及び SHG システム)

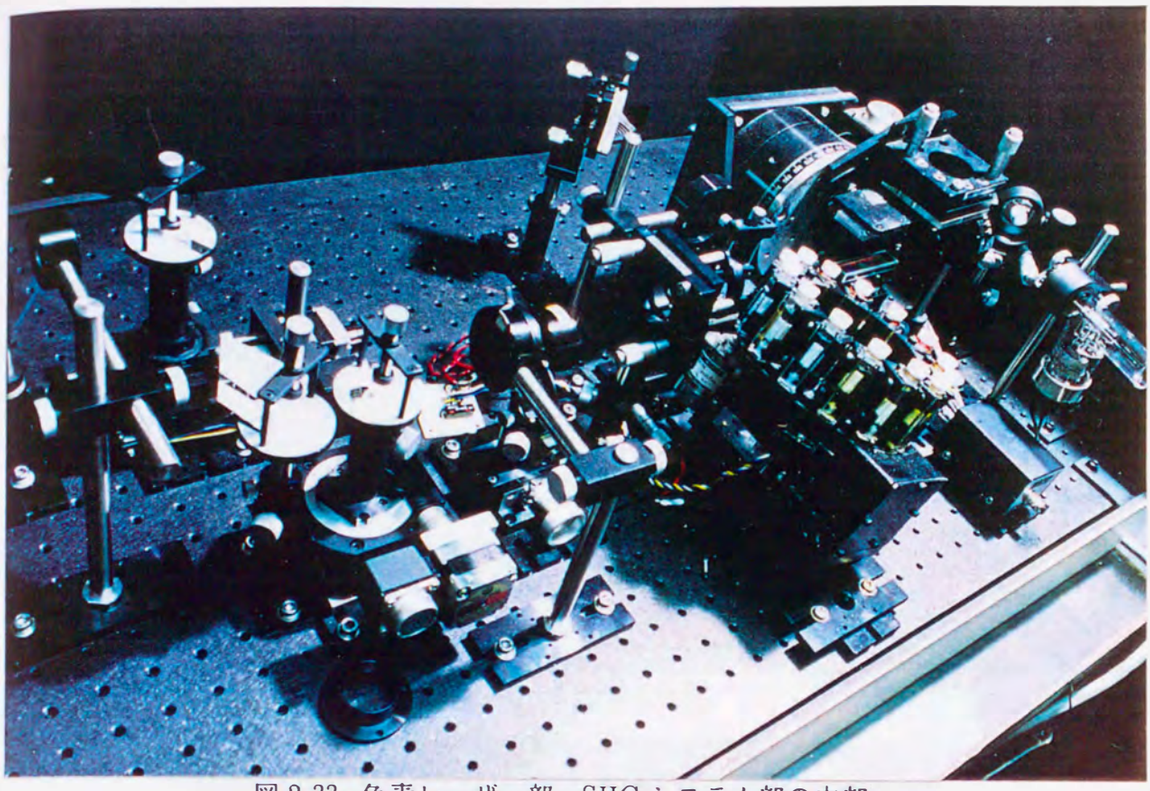


図 2-33: 色素レーザー部・SHG システム部の内部
(左から波長分離器,SHG 部, 色素レーザー, 最右はホローカソードランプ (OG 波長校正用)

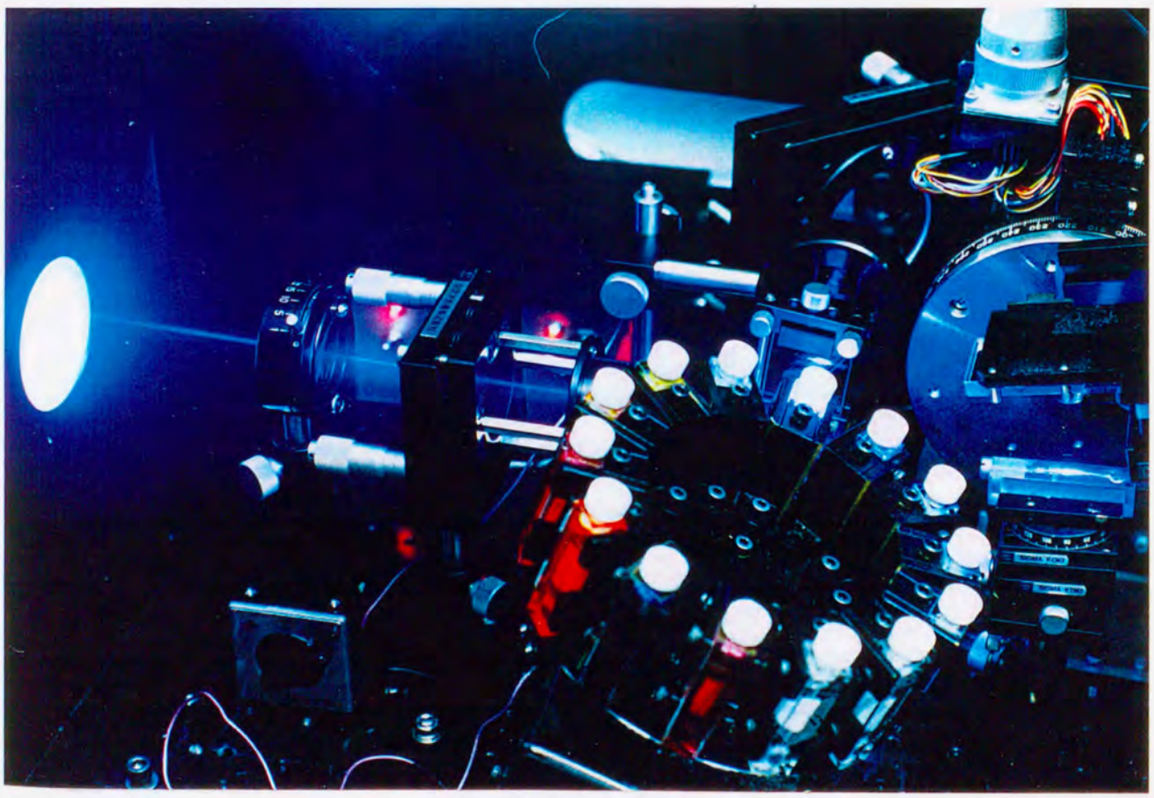


図 2-34: 色素レーザー部拡大
(手前がターレット式色素交換装置, 右がレーザー同調部)

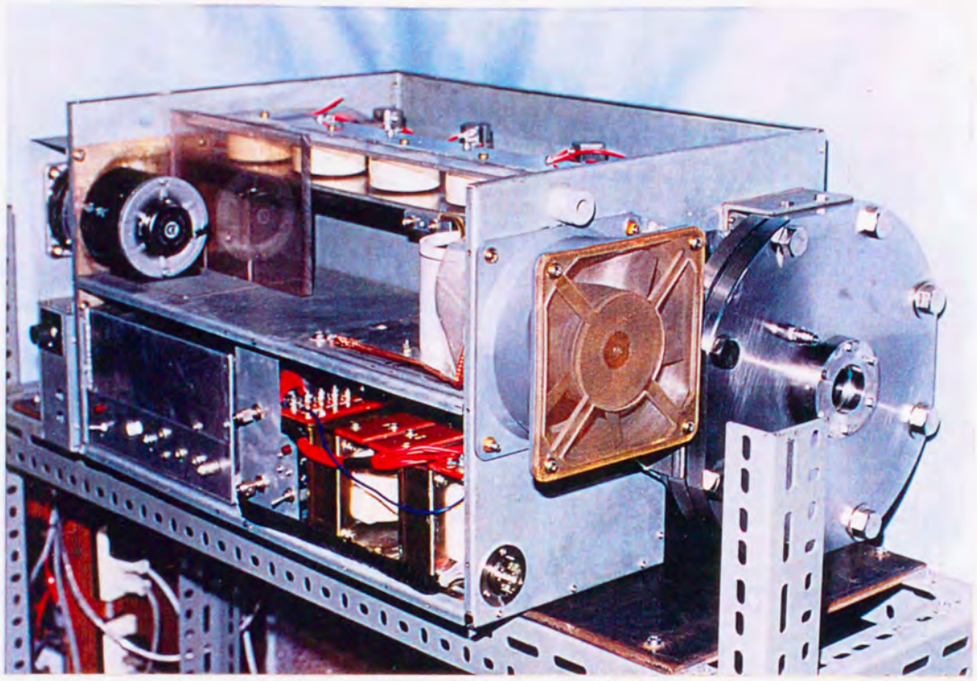


図 2-35: N_2レーザーの放電管外観

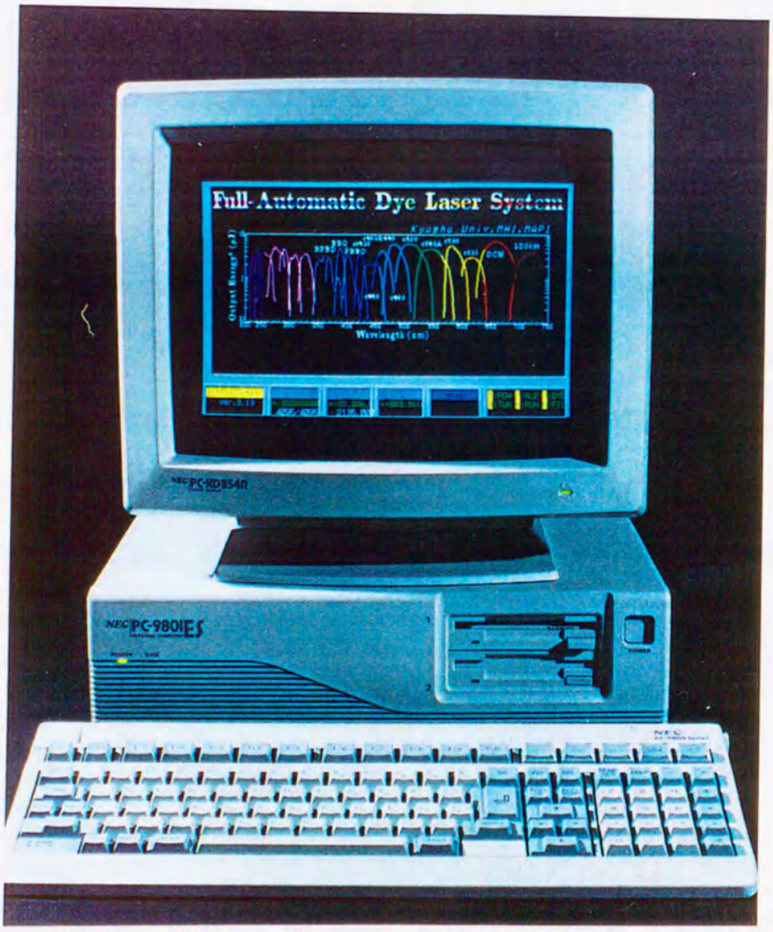


図 2-36: 制御コンピューター及びソフトウェアの画面