

单一モードCW色素レーザの製作

—Hannover工科大学における研究を中心として—

A Single - Mode CW Dye Laser

UDC 535.374 : 535.339.1

芳野俊彦*

Toshihiko YOSHINO

色素レーザは発振波長が広範囲に可変できるレーザとして多方面への応用が考えられるが、なかんずく分光学の理想的光源として期待されており、その性能向上と応用の研究が盛んに行なわれてきている。筆者は色素レーザの発展の初期の段階において一つの単一モード連続発振色素レーザの製作を行なったのでそのことについて述べてみたい。

1. はじめに

色素レーザが波長可変性のあるレーザとして注目されて登場してから10年になる。すなわち、1966年に最初のパルス発振がSorokin等¹⁾によって報告され、1970年にPeterson等²⁾が初めてその連続発振に成功した。その後、色素レーザの発振スペクトルの狭帯化、高出力化、安定化等の研究が進み、超高分解能分光学や同位元素分離などへの応用が行なわれつつある。筆者は1971年10月から73年9月にかけて西独Hannover工科大学実験物理学研究所に客員研究員として滞在中に分光学への応用を目的に各種の色素レーザの製作・研究を行なった。特に、前年度(1970)初めて成功が報告された連続発振(CW)色素レーザについては超高分解能分光学実験への応用を

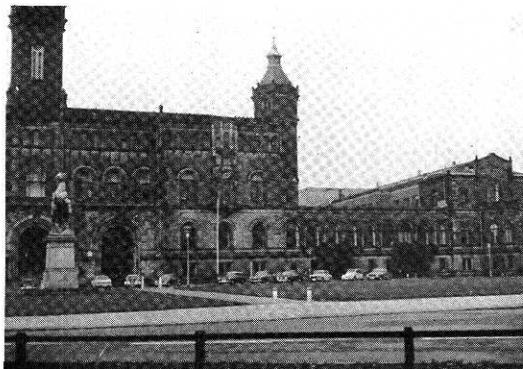


写真1 Hannover工科大学(西独)の本館建物

目的に独自に製作し、発振スペクトルの单一モード化等を行なった。このCW色素レーザの单一モード化は実用上非常に重要なことであるが、わが国ではまだその研究発表は見られない。本稿では筆者が当時製作した单一モードCW色素レーザについて述べてみたい。

2. 単一モードCW色素レーザ

製作した单一モードCW色素レーザの構成を図1に示す。セルを流れている水溶液中の色素分子をArレーザ光が光励起することによって連続発振色素レーザを得ている。発振スペクトルはプリズムと2枚のファブリ-ペロー・エタロンの作用によって狭帯域化され、Fox-Smith型モード選択器の作用によって单一モード化されている。

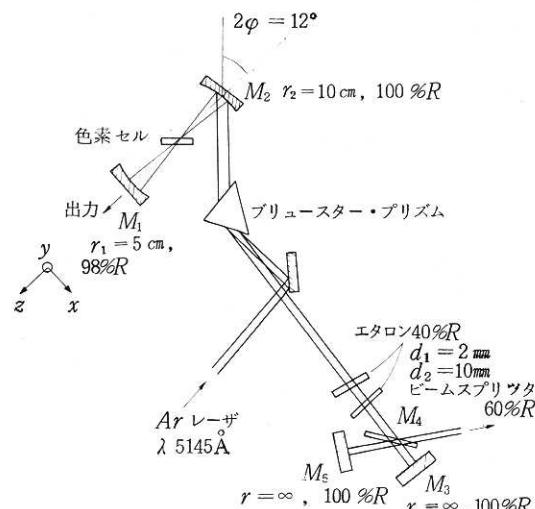


図1 単一モードCW色素レーザ共振器

共振器の長さは、 $\overline{M_1 M_2} = 10\text{cm}$, $\overline{M_2 M_3} = 190\text{cm}$ である。以下にこのレーザの主要点について述べる。

色素レーザのCW発振を起させるに必要な励起光エネルギーのしきい値は高く、通常の共振器構造では1MW/cm²程度のエネルギー密度を必要とする。その際、光励起された色素分子はそのエネルギーのかなりを熱として放出するので色素溶液中に温度分布を生じ、これがレーザ発振に好ましくない能動物質の光学的不均一性(屈折率の不均一性)を引き起こす。さらにまた加熱作用により色素分子や色素セルの窓が破壊される恐れもある。このような熱による悪影響を軽減するために色素溶液を冷却しながら循環させることが必要である。色素セルを色素

* 東京大学生産技術研究所 第1部

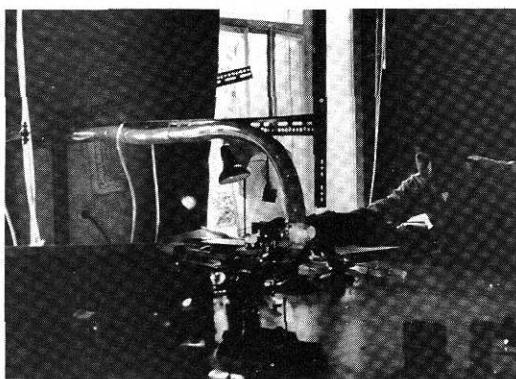


写真2 色素レーザ装置と実験中の筆者、中央で光っているのが色素セルである

溶液が通過する速さは、それが十分高速であるほど同一色素分子が加熱される時間が短く、従って熱効果を軽減する上では好ましいが一方、流体の性質として高速流は流れが乱れやすくなり、これは明らかにレーザ発振を不安定にする要因となる。そこで色素セルは高速流がなるべく安定に通過できる構造のものでなければならぬ。

図2に筆者が試行錯誤の後用いた色素セルの横断面図を示す。用いた色素溶液は、Rhodamine 6Gの 3×10^{-4} mol/lの水溶液に会合防止剤として4%のAmmonium LOを加えたものである。セルの本体は真ちゅう製である（アルミニウムは色素溶液とは化学的に反応するので使用できない）。色素溶液は幅4mm、厚さ0.9mm、長

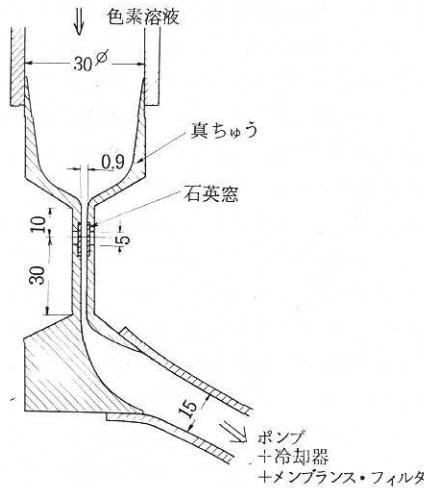


図2 色素セルの断面図・数字の単位はmm

さ40mmのチャンネルを上方から下方に流速10m/secで流れている。チャンネルの入口・出口部は図示したように断面がなめらかに変化する構造によってチャンネル中の色素溶液流の乱れを少なくしている。チャンネルの厚さ0.9mmだけの厚みをもっている色素溶液はポンピングArレーザ光（波長5145Å）を約84%吸収する。レーザ発振に使われている部分はチャンネルの入口から約10mm下がった点である。セルの窓は開口が5mm×5mm

で厚さが0.2mmの石英の薄板である。初め、窓材として厚手（1mm前後）の板ガラスを試用したがレーザ発振は得られなかった。セルの窓は色素溶液からの水圧のため開口部を十分小さくしないと破壊が起きた。色素溶液は高出力ポンプによって循環しており、途中に不純物を除去するためにメンブランス・フィルターと冷却をするためにリーピッヒクラを通してある。

次に共振器構造について述べる。共振器はプリズム及び三つの反射鏡 M_1, M_2, M_3 から成る主共振器と、二つの反射鏡 M_3, M_5 とビームスプリッタ M_4 からなるFox-Smith型モード選択機構から成っている。

主共振器の構成はDienes等³⁾によって用いられたものと同様である。すなわち、図1に示されたようにポンピングArレーザ光はプリズムで屈折した後レーザ軸に沿って進み、中間の反射鏡 M_2 （曲率半径 $r_2 = 10\text{cm}$ 、反射率 $R = 100\%$ ）によって M_2 の焦点面の近傍に約 $10\mu\text{m}^2$ のスポットに集光されて色素セル中の色素分子を光励起している。色素セルは光軸に対してブリュースター角 $\approx 55^\circ$ に傾いている。この共振器構造では、励起光の集光点が共振器のビームウェイストの位置とほぼ一致することなるのでポンピング効率は高くなる。この共振器構造で考慮しなければならないのは反射凹面鏡 M_2 から生じる非点収差の影響である。すなわち、 M_2 が光軸となす角を φ とすると xz 面と yz 面上で焦点距離 f_x, f_y が異なるので非点収差

$$\Delta f = f_y - f_x = \frac{r_2}{2} \left(\frac{1}{\cos \varphi} - \cos \varphi \right) \quad (1)$$

を生じ、この量が共振器の安定領域を越えると発振不可能になる。しかし旨いくことにこの非点収差は傾いた色素セル（屈折率 n 、厚さ t の平行平面板で近似）のもつ非点収差を用いると補償ができる。ガウスビームが傾いた平行平面板を通過したときに受ける収差は、ガウスビー

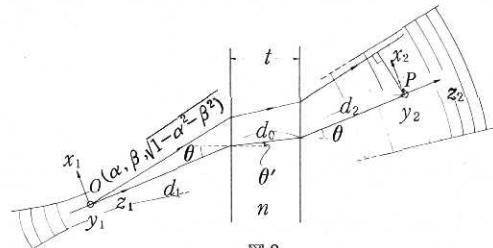


図3

ムの伝播則を用いることによって近似的に計算できるが⁴⁾、任意のビームに対して有効な平面波展開法を適用すると厳密に取り扱えることを示そう。図3に示すように、屈折率 n 、厚さ t の平行平面板に波長 λ の単色光ビームが入射角 θ で入射しており、入射側の任意の面 Ox_1y_1 の光の場を $U_0(x_1, y_1)$ 、平行平面板を通過したビームが z_2 軸に垂直な任意面 Px_2y_2 上で持つ振幅分布を $U_p(x_2, y_2)$ とする。今、入射光をいろいろな方向 $(\alpha, \beta, \sqrt{1-\alpha^2-\beta^2})$ に進む

平面波スペクトル $A_0(\alpha, \beta)$ に分解しよう。

$$A_0(\alpha, \beta) = \iint_{-\infty}^{\infty} U_0(x_1, y_1) \exp[-i2\pi(\frac{\alpha}{\lambda}x_1 + \frac{\beta}{\lambda}y_1)] dx_1 dy_1$$

このとき各成分平面波は異なる位相遅れを持って O から P 到達する。その位相遅れを計算して到達平面波を合成すると $U_p(x_2, y_2)$ が

$$U_p(x_2, y_2) = \tau \iint_{-\infty}^{\infty} A_0(\alpha, \beta) \exp[i\frac{2\pi}{\lambda}(d_1 + nd_0 + d_2)r \\ + i\frac{2\pi t}{\lambda}(n\sqrt{1 - \frac{p^2+q^2}{n^2}} + p\frac{\sin\theta'}{\cos\theta'} - \frac{n r}{\cos\theta'})] \exp[i\frac{2\pi}{\lambda}(\alpha x_2 + \beta y_2)] d\frac{\alpha}{\lambda} d\frac{\beta}{\lambda} \quad (2)$$

ここに、

$p = \alpha \cos\theta + r \sin\theta$, $q = \beta$, $r = \sqrt{1 - \alpha^2 - \beta^2}$, $n \sin\theta' = \sin\theta$ と求まる。 τ は平行板の振幅透過率である。ここに境界面でのくり返し反射は考慮していない。(2)式は任意の形状と曲率を持つ一般のビームに対して成り立つ関係式であるが特にガウスビーム(ビームウエイスト w_0)

$$U_0(x_1, y_1) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{w_0} \exp[-(x_1^2 + y_1^2)/w_0^2]$$

に対しては、そのスペクトルは

$$A_0(\alpha, \beta) = \sqrt{2\pi} w_0 \exp[-\pi^2 w_0^2 ((\frac{\alpha}{\lambda})^2 + (\frac{\beta}{\lambda})^2)] \quad (3)$$

で、成分平面对の位相遅れ((2)式の第1番目の \exp の指数)は

$$i\frac{2\pi}{\lambda}(Dr + \frac{t(n^2-1)}{2n}(\frac{\alpha^2}{\cos\theta'} + \frac{\beta^2}{\cos\theta'}))$$

ここに、 $D = d_1 + nd_0 + d_2$

と計算される。ここにスペクトル (α, β) の拡がりは十分小さいとして α^2, β^2 の項までとった。このとき $Px_2 y_2$ 面における光の場は

$$U_p(x_2, y_2) = \tau \sqrt{\frac{2}{\pi}} \exp(i\frac{2\pi}{\lambda}D) \frac{w_0}{w_x w_y} \exp(-\frac{x_2^2}{w_x^2} - \frac{y_2^2}{w_y^2}) \quad (4)$$

ここに、

$$w_x = \sqrt{w_0^2 + i\frac{\lambda}{\pi}D_x}, \quad w_y = \sqrt{w_0^2 + i\frac{\lambda}{\pi}D_y}$$

$$D_x = D - \frac{t(n^2-1)}{n} \frac{1}{\cos\theta'}, \quad D_y = D - \frac{t(n^2-1)}{n} \frac{1}{\cos\theta'}$$

と計算される。(4)式を均一媒質中のガウスビームの伝播の公式⁵⁾と比べてみると、実効伝播距離が xz 面、 yz 面とで

$$\Delta D = D_y - D_x = \frac{t(n^2-1)}{n} \left(\frac{1}{\cos\theta'} - \frac{1}{\cos\theta'} \right)$$

だけ異なっている。この ΔD がガウスビームに対する平行平面板の非点収差を与える、特にブリュースター角 $\theta = \tan^{-1} n$ だけ傾いた平行平面板に対しては

$$\Delta D = t(n^2-1) \sqrt{n^2+1} / n^4 \quad (5)$$

となる。従って(1), (5)より

$$2t(n^2-1) \sqrt{n^2+1} / n^4 = r_2 \tan\varphi \sin\varphi$$

ならば $\Delta f = \Delta D$ となって凹面鏡 M_2 の非点収差 Δf が色素セルの非点収差 ΔD によって補償されることが判る。現在の場合、色素セルは厚さ 0.2 mm の2枚の石英の窓(屈折率 1.45)と厚さ 0.9 mm の水の層(屈折率 1.33)から成っているので平均屈折率 $n = 1.33 \times \frac{0.9}{1.3} + 1.45 \times \frac{0.4}{1.3} = 1.37$ で厚さ $t = 1.3 \text{ mm}$ の平行平面板と見なすことができる。従って非点収差補償角は $\varphi = 6^\circ$ となり、実験では反射鏡 M_2 はこの角に傾けてある。

この共振器でもう一つ注意しなければならないのは共振器の安定領域である。この共振器の安定領域は非点収差補償が行なわれているときに最大となる。上の非点収差補償の実験配置に対しては、安定領域は、反射鏡 M_1 (曲率半径 $r_1 = 5 \text{ cm}$) と M_2 の間隔が

$$\begin{aligned} \overline{M_1 M_2} &= r_1 + f_y - t\sqrt{n^2+1} / n^2 + \delta \\ &= 99.1 \text{ mm} + \delta \end{aligned}$$

$$0 < \delta < f_y^2 / (\overline{M_2 M_3} - f_y) \approx 1.4 \text{ mm}$$

を満たす範囲で与えられる。⁴⁾ これより反射鏡間隔 $\overline{M_1 M_2}$ に対する許容範囲 δ が小さいことが判る。このことは M_1 と M_2 の相対的位置が十分正確に調整されなければならないことを示している。セルの位置及び反射鏡の位置の調整は色素分子の蛍光を利用するのが最も便利であることが判った。調整法は、まず Ar レーザ光によって発光している色素分子の蛍光が最も高輝度となるセルの位置を求める。次にセルから後方に放出された蛍光が $M_1 \rightarrow$ セル $\rightarrow M_2 \rightarrow M_3$ に到るビームパターン(プリズムの分散作用によって横方向に長い色帯となっている)がセルから十分遠方で結像するように M_1 の位置を決める。これによって M_1, M_2 については良好な位置決めが行なえた。発振出力は Ar レーザ 1.6 W, 発振波長 $5,900 \text{ \AA}$ に対して約 60 mW であった。

レーザ発振スペクトルの狭帯化について述べよう。上述した主共振器において、Ar レーザの結合器であるプリズムはまたその波長分散作用によって粗い波長選択器の役目をしている。発振線幅を更に狭くするために、表面に誘電体多層膜(反射率 40%)をコートした石英板ファブリーペロー・エタロン、厚さ $d_1 = 2 \text{ mm}$ 及び $d_2 = 10 \text{ mm}$ のものを共振器の長いアーム部に光軸に対して若干傾けて挿入した。モード選択エタロンの大体の性質は、平面波(波面は平面でビーム幅は無限大の波)に対するエタロンの性質で表わせる。厚さ d , 屈折率 n , 表面反射率 R のエタロンの平面波に対する透過率は、エタロンの傾き角を θ とすると

$$T = 1 / (1 + F \sin^2(2\pi n d \cos\theta/\lambda)) \quad (6)$$

で与えられる。ここに

$$F = 4R / (1 - R)^2, \quad n \sin\theta' = \sin\theta.$$

但し、エタロンの境界面での内部反射の際に生じる位相のとびはエタロンの特性に本質的な影響がないので無視した。(6)式よりエタロンは、最大透過率 $T_{\max} = 1$ 、最小透過率 $T_{\min} = 1/(1+F)$ でフリースペクトルレンジ(周期周波数) $\mathcal{Q} = c/(2nd \cos \theta') \approx c/(2nd)$ 、 c は光速、のバンドパスフィルターと見なせる。平均透過率 $T_a = \frac{1}{2}(T_{\max} + T_{\min}) = (2+F)/2(1+F)$ 以上の透過率を与える周波数幅でエタロンの透過バンドを定義するとそのバンド幅は

$$\Delta\omega = (2\omega/\pi) \sin^{-1}(1/\sqrt{2+F})$$

で与えられる。従って、このバンド幅の中心周波数の近傍のモードは殆んど反射されることなくエタロンを通過するが、中心周波数からかなり離れたモードはエタロンによって相当の割合で反射される。エタロンを通過したビームは共振器内に保存されるが、反射されたビームは光軸に対して傾いて(角度 $2\theta'$)いるため共振器外に失なわれ損失となり、従ってモード選択が行なわれる。また、傾き角を変えることによってエタロンの等価厚さ $nd \cos \theta'$ が変化できるので発振波長の同調が行なえる。

さて、実際のレーザビームは平面波と異なり、ビーム径は細く(典型的には 1 mm^{ϕ} 程度)また、波面も一般には曲率を持っている。このことがモード選択エタロンの特性に及ぼす影響について調べよう。有限のビーム幅を持ったビームが傾いたエタロンの内部でくり返し反射をすると、発生した多光束間に横方向のずれ、すなわちウォークオフ(walk-off)が生じる。このため多光束間に空間的に重ならない部分が生じ、また、重なった部分でも波面の不整合が生じる。従って、エタロンにおける干渉効果が平面波の場合に比べて小さくなる。筆者等⁶⁾は、任意の形状と曲率をもったビームに対するエタロンの透過率は、やはり入射光を平面波スペクトルに展開することによって

$$T = \int_{-\infty}^{\infty} |A_0(\alpha, \beta)|^2 / \{1 + F \sin^2(2\pi n d \cos \theta'(\alpha, \beta) / \lambda)\} \\ d\alpha d\beta / \int_{-\infty}^{\infty} |A_0(\alpha, \beta)|^2 d\alpha d\beta \quad (7)$$

で与えられることを示した。ここに $A_0(\alpha, \beta)$ は(2)で用いたのと同じく入射光ビームの任意面における平面波

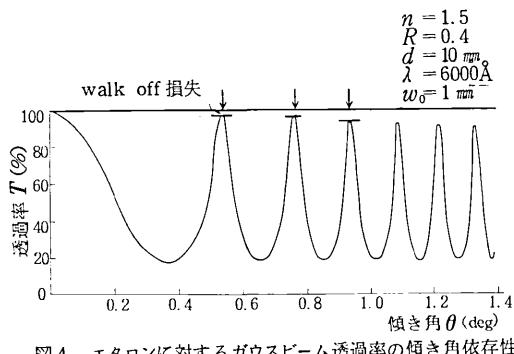


図4 エタロンに対するガウスビーム透過率の傾き角依存性

スペクトルである。特にガウスビーム(ビームウエイスト w_0)に対して計算した例が図4である。横軸はエタロンの傾き角である。最大透過率の100%からのずれがウォークオフ効果によるエタロンの損失を表わしている。図5は、このガウスビーム透過率の最大、最小値を傾き角 θ の関数として示したもので、平面波に対するものと比較している。傾き角 θ の増加と共に両者の差異が顕著になっていくのが判る。

エタロンの傾き角 θ が十分小さいときは、ウォークオフ損失 L は、(3)、(7)式より解析的に計算できる。その結果は⁶⁾

$$L = F \frac{d^2 \theta^2}{n^2 w_0^2}$$

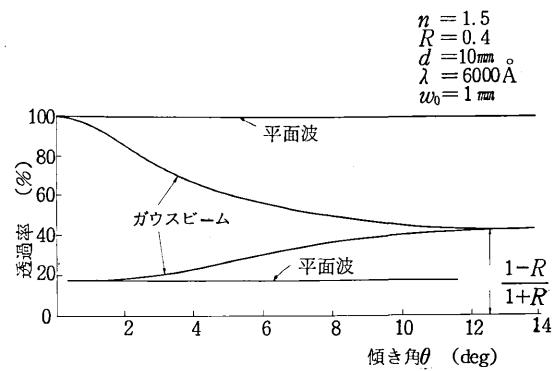


図5 傾いたエタロンの最大・最小透過率の傾き角依存性
である。この関係式からウォークオフ損失は、 F 、 d が大きくなり w_0 が小さいときに大きくなることが判る。実験でも、厚さ $d = 10\text{ mm}$ のエタロンに対しては顕著なウォークオフ損失が見られた。

使用した2枚の石英エタロン($n = 1.45$)に対する特性パラメータは、表面の反射率が $R = 0.4$ 従って $F = 4R/(1-R)^2 = 4.4$ を考慮すると(I) $d_1 = 2\text{ mm}$; $\mathcal{Q}_1 = 51.8\text{ GHz}$, $\Delta\omega_1 = 13.4\text{ GHz}$, $T_a = 59\%$, (II) $d_2 = 10\text{ mm}$; $\mathcal{Q}_2 = 10.3\text{ GHz}$, $\Delta\omega_2 = 2.7\text{ GHz}$, $T_a = 59\%$ となる。今、共振器の全長が $L = 2\text{ m}$ であるからモード間隔は $\mathcal{Q}_0 = c/(2L) = 75\text{ MHz}$ である。従って、この二つのエタロンの透過バンド幅内に含まれるたてモードの数は、 $N_1 = \Delta\omega_1/\mathcal{Q}_0 \approx 179$, $N_2 = \Delta\omega_2/\mathcal{Q}_0 \approx 36$ である。この N が数が小さいほどモードの選択性がよいことを表わしている。実験ではこの2枚のエタロンの挿入だけでは単一モード発振にならなかった。そこで、よい鋭いモード選択性を与えるため He-Ne レーザ発振の単一モード化に使われた Fox-Smith型モード選択器⁷⁾を適用した。図1で反射鏡 M_3 , M_5 及びビームスプリッタ M_4 がそれを構成している。 M_4 はブリュースター角に傾いた石英板で一面は反射率 $R = 60\%$ の誘電多層膜をコートしてある。 M_2 方向から Fox-Smith型モード選択器に入射する単色光の中、 M_4

から外側に放出されずに M_2 方向に戻ってゆく光量の割合すなわち反射率は、表面反射率がビームスプリッタの反射率に等しく光学的厚さ nd が $\ell = \overline{M_3 M_4} + \overline{M_4 M_5}$ に等しいファブリ-ペロー・エタロンの垂直入射透過率と一致することが示せる。実験では $\ell = 9 \text{ cm}$ にとった。これに対する等価エタロンのフリースペクトルレンジは $Q = 1.67 \text{ GHz}$ 、平均反射率は $R_d = 53\%$ バンド幅は $\Delta\omega = 260 \text{ MHz}$ となる。従ってこのモード選択器のバンド幅に含まれるたてモードの数は $N = \Delta\omega/Q_0 = 3.5$ となり、非常に鋭いモード選択性を与えていることが判る。このモード選択器の作用によって单一モード発振が達成できた。出力は、励起Arレーザ 1.4 W 、発振波長 $5,900 \text{ Å}$ で約 0.6 mW であった。また発振スペクトル線幅は短時間内で数MHz であった。発振光及び励起Arレーザ光は P 偏光すなわち紙面内に偏っており、発振光のパターンは近似的に TEM₀₀ であった。発振光のスペクトルの観測は走査型ファブリ-ペロー干渉計で行なった。ビームスプリッタ M_4 の傾きの調整には M_1, M_2 の調整と同じく色素の蛍光による色素パターンを利用した。单一モード発振状態で M_4 から外側に10分の数mW程度のレーザの放出光があった。この放出光も便宜的に一つの出力光として利用できた。

発振波長の変化は、最も粗くはビームスプリッタ M_4 を取り外して M_3 を回転することによって行なった。これによって $5,600 \text{ Å}$ から $6,500 \text{ Å}$ までに変えられた。より細かな波長変化はエタロンを回転してそのバンドパスフィルタの中心周波数を移動することによって行なった。单一モード発振での周波数の微細な同調についての実験は時間的制約のために十分できなかったのであるが、 M_1 と M_5 又は M_3 と M_5 をピエゾ素子を用いて移動させれば可能である。このことは、著者とは独立に行なわれた他の著者の実験⁸⁻¹⁰⁾ によって実証されている。 M_1 と M_5 を動かして行なう場合は、両者を $\overline{M_1 M_2} + \overline{M_2 M_3} : \overline{M_3 M_4} + \overline{M_4 M_5} = 200 : 9$ の割合で同期して動かせばモードホッピングを生じないで発振周波数を変化させることが可能である。この場合 M_1 を $\lambda/2$ 動かすと $Q_0 = 75 \text{ MHz}$ だけ周波数が変化することになる。

3. おわりに

色素レーザに関する研究は筆者が Hannover に滞在している頃欧米を中心にして特に活発であり、当時筆者の出席したドイツおよびヨーロッパでのいくつかの物理学会やレーザ関係学会において最も関心を集めていた分野の一つであった。その後現在に至るまで日本を含め世界的に研究は続けられてきている。その研究成果により最近は出力・安定性・周波数可変範囲等に良好な性能を保証する市販品も出てきている。今後、波長可変レーザへの要求は分光学や応用分光学を中心にますます強まろう。その中で、最も実用化への研究が進んでいる色素レーザは重要な位置を占めるであろう。

筆者は Hannover 工大実験物理学研究所において、单一モードCW 色素レーザの製作に取りかかるまでは、 N_2 レーザ励起及びフラッシュランプ励起の色素レーザの製作と改良を研究所のメンバーと共に共同で行なった。筆者が研究所に滞在中に行なったアルバイトが同研究所のその後の研究に幾分なりとも役立ったことを喜んでいる。終りに、筆者のドイツでの滞在と研究活動を支援して頂いた研究所長 A. Steudel 教授並びに共同実験者として協力してくれた H. O. Behrens 氏に感謝する次第である。

(1976年7月20日受理)

参考文献

- 1) P. P. Sorokin, J. R. Lankard : IBM J. Res. Develop. 10 (1966) 162
- 2) O. G. Peterson, S. A. Tuccio, B. B. Snavely : Appl. Phys. Lett. 17 (1970) 245
- 3) A. Dienes, E. P. Ippen, C. V. Shank : IEEE J. QE-8 (1972) 388
- 4) H. W. Kogelnik, E. P. Ippen, A. Dienes, C. V. Shank : ibid. 373
- 5) H. Kogelnik, T. Li : Appl. Opt. 5 (1966) 1550
- 6) 芳野・武田 : 第35回応用物理学会講演予稿集 I (1974) 181
- 7) P. W. Smith, IEEE J. QE-1 (1965) 343
- 8) R. E. Grove, F. Y. Wu, L. A. Hackel, D. G. Youmans, S. Ezekiel : Appl. Phys. Lett. 23 (1973) 442
- 9) S. Lieberman, J. Pinard : Appl. Phys. Lett. 24 (1974) 142
- 10) G. Marowsky, F. K. Tittel : Appl. Phys. 5 (1974) 181