レーザーノート 2

放電管励起色素レーザーの製作技術

前田 三男*・宮副 泰**

Techniques for Construction of Flashlamp-pumped Dye Lasers

Mitsuo MAEDA* and Yasushi MIYAZOE**

1. まえがき

1966年にSorokinらにより色素レーザーの最初の実験が行なわれて以来、ここ数年間の色素レーザーの発達は目覚しく、可変波長レーザーとして確立した地位を占めるに至っている。また実用的な装置の開発や製品化が進むにつれ、分光光学等への応用研究が盛んになりつつあり、いろいろな分野で、色素レーザーを研究に使いたいという声を耳にするようになった。色素レーザー一般に関する解説は他にあるので、¹⁻³⁾ここでは色素レーザーを研究用に試作しようとする方々のために、筆者の経験に基づいて放電管励起色素レーザーの設計・製作の実際的な方法を述べる。

一般に光ポンピングが用いられる色素レーザーは、励起光源の違いによりレーザー励起形と放電管励起形とに分けられる。レーザー励起形では、CW発振ができるアルゴンレーザー励起や、広い波長域でくり返しの早い発振ができる窒素パルスレーザー励起等が実用的に重要である。それに対して放電管励起の特長は(1)パルス当りの出力エネルギーが大きいこと、(2)装置が比較的安価にできること、(3)白色光であるために発振波長域に対する本質的な制限がないこと等があげられる。

本稿では試作例として、最大出力180 mJの直線形放電管励起色素レーザーをとり上げる。試作機の特性をまとめると Table 1 の通りである。その外観を Fig. 1 に示す。

Table 1. Specification and performance of the constructed dye laser

Maximum out energy	180mJ (at 145 J input, 597nm)
Tuning range	455~485, 515~695nm (tuning with a grating)
Pumping source	A linear flashlamp with elliptical cavity
Condenser	1 μ F 20 kVDC (200 J max)
Waveform of pumping light	Risetime 1 μ s, FWHM 3.6 μ s
Flashlamp	5 mm inner dia., 130 mm gap length (forced air cooling)
Dye cell	5 mm inner dia., 180mm overall length (solution is circulated)
Repetition rate	12 ppm (air cooling)
Beam divergence	3~10 mrad (untuned case)

Fig. 1. A photograph of the dye laser system.
A: Elliptical reflector, B: Condenser,
C: Triggered spark gap, D: Cavity mirror,
E: Dye cell, F: Trigger terminal.

* ** 九州大学工学部 電気工学科

* ** Department of Electrical Engineering, Kyushu University, Hakozaki, Fukuoka

2. コンデンサおよび放電回路

色素レーザーではルビーレーザー等と異なり、通常 $10^{-7} \sim 10^{-6}$ 秒の早い励起立上り時間に設計される。この理由は色素の励起状態の寿命が短い(nsオーダー)ことと、三重項状態への分子の蓄積による発振の抑制を避けるためである。¹⁾放電管励起の場合 $10 \sim 100 \mu\text{s}$ の遅い立上りでも、三重項消光剤を使えば発振は可能であるが、効率が悪い上に熱ひずみのために発振時間を $10 \mu\text{s}$ 以上継続させることは容易でない。逆に立上り時間を 100ns 以下にすれば、発振可能域が紫外から近赤外まで広がる等、著しい特性の改善が見られることを筆者は先に報告した⁴⁾。

Fig. 2. Electrical circuit of flashlamp system.

Fig. 2に放電回路を示す。放電回路をコンデンサC、回路の残留インダクタンスLおよび放電抵抗R ($0.1 \sim 1 \Omega$ オーダ)の直列回路と見なすと、そのリングング周波数は、

$$\nu = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{1}{LC} - \frac{R^2}{4L^2} \right)^{\frac{1}{2}}$$

となるから、立上りを早めるにはL、Cを小さくすればよい。そのため同一エネルギーを得るには、絶縁に支障のない範囲で電圧を高めCを小さく設計した方が有利である。Lはコンデンサの内部残留インダクタンスとリード線や放電管部のインダクタンスよりなる。インダクタンスを減らすには回路を太く作り、局部的に強い磁界ができるのを避けることが大事である。試作機では $C = 1 \mu\text{F}$ とし、 $L = 0.1 \mu\text{H}$ 以下の低残留インダクタンス形コンデンサを特注し(ニコチン OBSI-H 20 CHW)、Fig. 1のごとくレーザーヘッドをその上にのせて放電回路を極力

短くすることにより、Fig. 3に示すように立上り $1 \mu\text{s}$ を得た。リングング周波数より逆算すると回路のLは $0.23 \mu\text{H}$ であった。

Fig. 3. Waveform of pumping light. Sweep: $1 \mu\text{s}/\text{div.}$, air 30 torr, 128 J input energy.

3. 放電管およびトリガギャップ

色素レーザーに使われる放電管には同軸形¹⁾と直線形とがある。前者は放電回路のインダクタンスが小さくできるために立上りの早い励起を行う際に有利であるが、放電管を取換えるとき色素セルも含めて交換せねばならないこと、放電時におけるセルとの音響的・熱的結合のしや断が困難であること等が欠点としてあげられる。

直線形放電管の場合には、従来からある固体レーザー用キセノン管を使うことも可能であるが、色素レーザーの場合には短時間に大電流の放電を行うため、放電のショックで破損しやすいようだ。最近では色素レーザー専用の放電管も二三発売されている。破損の起こる臨界入力エネルギーは放電管の内容積と放電パルス幅の $1/2$ 乗に比例して高くなることが知られているが、⁵⁾放電管を無暗に大きくつくことはレーザー効率を著しく悪化させるので避けねばならない。管材の厚みを増すことはショックによる破損を防ぐのに有効である。また Ferrar⁶⁾は放電管にショックアブゾーバをつけることにより、小容積で破損エネルギーの高い放電管をつくっている。⁷⁾

試作機ではFig. 4(a)に示したような手製の放電管を用いた。管材は内径 $5\text{mm}\phi$ 、外径 $9\text{mm}\phi$ の肉厚石英管、電極はタングステンである。入力 130J で3000回以上の反復放電に耐える。放電をくり返すと石英管内部に細い亀裂が生じ白ず

Fig. 4. The construction of flashlamp (a), triggered spark gap (b), and dye cell (c). Unit: mm.

んでくる。放電管の組立てにはエポキシ系接着材を用い、ガスは封じ切らないで実験の度に真空ポンプで入れ換えている。封入ガスはキセノン、アルゴン、空気の三種を試みたが、いずれの場合にもレーザー出力に大きな差を見出せなかった。主に空気を使用している。封入気圧は10～50 Torr にわたって効率にあまり影響はなかった。

放電光の色素セルへの集光は楕円筒鏡を使った。楕円筒鏡は放電管の絶縁にさえ注意すれば、一般の固体レーザー用のものと同じでよい。試作機では銅板の一面を研磨後真空アルミメッキして反射率を高めたものを、楕円に曲げて使っている。

トリガギャップはFig. 4(b)に使したような構造で、常圧下ギャップ長約5 mmで放電する。7～17 KVでトリガ可能であった。電極は鉄材であるが、数千回の放電によって囲りの絶縁物にスパッタし、トリガが不整になるので、時々分解して内面を清掃する必要があった。

4. 色素セルおよび色素

Fig. 4(c)に色素セルを示す。セルの内径と外径

は放電管のそれに一致させた。セルの内径が大きすぎると発振の臨界エネルギーが著しく上昇するので、発振しにくい色素の場合には細目のセルの方が良い。セルはエポキシ系接着材ではり合わせた。接着の際充分な洗浄の後110℃で数時間の硬化を行なえば、アルコール類に対しても実用上充分な耐久力をもたせることができる。色素溶液は容量400 ccのリザーバを通して小形回転ポンプで毎秒15ccの割合で循環させている。液の温度上昇を防ぐため、リザーバをファンで空冷している。

試作機で発振できる色素を各波長毎にTable 2に示す。485～515 nmにある切れ目を除けば、455～695 nmの波長域で発振可能であった。色素と溶媒は市販試薬級のものでもさしつかえないが、純度を上げることによって特性が改善されることが多い。例えば市販のRhodamine 6 GとRhodamine B (いずれも東京化成製) を、酸を用いて再結晶精製すると、レーザー出力がそれぞれ1.6倍および2倍に増加した。単にろ過しただけでも効率が上がることがある。

色素溶液は光をあてなければ一年程度で劣化が認められることはないが、レーザーに使用すると劣化が認められる。Xanthine系色素の退色は主に酸化反応と考えられ、反応は照射光量と溶液中に溶け込んだ酸素の量に依存する。⁸⁾今のところ溶液の劣化を防ぐ決定的な方法はなく、高い効率を維持するには時々新しい液に取換える必要がある。

5. 発振の諸特性

本機の最大出力は、Rhodamine 6 Gを用いて180 mJ、効率は0.13%であった。その際の出力鏡の反射率は30%、共振器長は25 cmである。最近の報告では最高効率1.2%、⁹⁾最高出力32 J¹⁰⁾が得られているが、出力を増加するには励起光の「時間的・空間的密度」を高めることが最も重要であり、色素レーザーにあってはいたずらに装置を大形化しただけでは出力が増加しないことが多い。

Fig. 5に10秒毎に連続200回の発振を行なった

Table 2. Lasing dyes and their performances

Dye (Supplier)	Solvent	Concentration	Output energy ^a	Tuning range ^b
Cresyl Violet(Tokyo Kasei)*	Methanol	3×10^{-4} M	60m J	642~695nm
Rhodamine B (Tokyo Kasei)*	Ethanol	1.5×10^{-4}	150	602~651
Rhodamine 6 G(Tokyo Kasei)*	Ethanol	1.5×10^{-4}	180	573~622
Brilliant Sulfoflavine (Tokyo Kasei)*	Ethanol +COT ^c	4×10^{-4}	13	515~583
7-Diethylamino-4-methyl coumarine (Dojindo)	Ethanol	4×10^{-4}	31	455~485

* Purified in our laboratory.

a. 145 J input energy, 25 cm cavity length, $R \approx 30\%$, untuned case.

b. Grating (1200 line/mm), 30 cm cavity length, $R \approx 70\%$.

c. Added in the deoxygenated solution by bubbling of N_2 gas.

Fig. 5. The lasing output energy in the case of repetitive operation of 6 ppm. Rhodamine 6 G, 130 J input energy, forced air cooling, total 200 shots (a rest for 150 second in the midst).

際の実出力エネルギーの変化を示す。その際楕円筒鏡内をポンプで排気空冷している。水冷式にすれば1Hz以上のくり返しも可能と思われるが、放電管の寿命を考えれば長時間の運転は無理であろう。外国では最高100Hzで2.5Wの平均出力が得られた報告がある。¹¹⁾

Table 2に回折格子(1200本/mm, プレーズ波長500nm)を反射鏡の代わりに用いて波長を変えたときの tuning rangeを示した。出力を上げると回折格子面を痛めるので、出力の測定はしていない。スペクトル幅は弱い励起の場合3 Å程度であった。本機の共振器内に三種のエタロン板(厚さ1mm, 0.15mm, 0.01mm)を挿入して、最小0.04 Åのスペクトル幅での発振が得られたことを、先に報告している。¹²⁾

また本機を用いて可飽和吸収体で自己モード同期をかけると最小幅6 psのパルス列が得られる。¹³⁾

6. むすび

筆者の経験をもとに、研究室的センスでの中形放電管励起色素レーザーの製作法を述べた。本試作機の前形は1968年に製作され、¹⁴⁾その後1972年に改良されて現在まで安定した性能を維持している。

最近外国では性能の良い色素レーザーがメーカーから次々に発売されているのに対し、我国は大きな遅れをとってしまったような感じがしてならない。メーカーでなら、放電管にしる、コンデンサにしる、色素レーザーに適した部品を開発してゆくことにより、ここに述べた試作機以上のものを作ることは容易なように思われる。我国においても、優れた色素レーザーが開発されることを期待する。

参考文献

- 1) P. P. Sorokin et al: J. Chem. Phys. **48** 4726 (1968)
- 2) M. Bass et al: *Lasers* III (Merzel Dekker Inc. 1971) p.269
- 3) 前田, 宮副: 応用物理 **41** 818 (1972)
- 4) M. Maeda, Y. Miyazoe: J. J. A. P. **11** 692 (1972)
- 5) ILC Technical Bulletin No. 5
- 6) C. M. Ferrar: Rev. Sci. Instr. **40** 1436 (1969)
- 7) 筆者も最近類似の方法で出力1 J の高出力色素レーザーを製作した。(unpublished)
- 8) 前田, 山本, 宮副: 昭和47年電気四学会九州支部連大 **556**
- 9) P. Anliker et al: Optics Comm. **5** 137 (1972)
- 10) V. A. Alekseev, I. V. Antonov: Soviet J. Quantum Elec. **1** 643 (1972)
- 11) W. Schmidt, N. Wittekindt: Appl. Phys. Letters **20** 71 (1972)
- 12) 前田他: 九州大工学集報 **46** 371 (1973)
- 13) 前田他: 信学会量エレ研究会資料 QE 72-60 (1972)
- 14) 宮副, 前田: 九大工学集報 **41** 778 (1968)