パルス色素レーザーの励起波長依存性

前田 三男, 高尾 隆之, 興 雄司, 五十嵐 香*, 草間 秀晃**

九州大学システム情報科学研究科電子デバイス工学専攻(〒812-81 福岡市東区箱崎6-10-1)

*千葉工業大学化学工学科(〒275 千葉県習志野市津田沼2-17-1)

** (財)産業創造研究所(〒277 千葉県柏市高田1201)

Effect of Excitation Wavelengths in Pulsed Dye Lasers

Mitsuo MAEDA, Takayuki TAKAO, Yuji OKI, Kaoru IGARASHI*, and Hideaki KUSAMA**

Department of Electrical Devices, Graduate School of Information Science and Electrical Engineering, Kyushu University,

6-10-1 Hakozaki, Higashi-ku Fukuoka 812-81

*Department of Industrial and Chemistry, Chiba Institute of Technology, 2-17-1 Tsudanuma, Narashino-shi Chiba 275

**Institute of Research and Innovation, 1201 Takara, Kashiwa-shi Chiba 277

(Received September 20, 1996)

In order to develop a high-efficiency pulsed dye laser, laser efficiencies of various dyes were measured at three different pumping wavelengths of the Cu vapor laser (511 nm and 578 nm) and the frequency-doubled Nd:YAG laser (532 nm) in the same condition. A simulation model for Rhodamine 6G (R-6G) dye laser was also developed to analyze the effect of excitation wavelengths. Some Rhodamine dyes show higher efficiency than those of R-6G in simultaneous two-wavelength pumping by a Cu vapor laser. A dye mixture of Cresyl Violet 670 and Rhodamine 640 was as efficient as R-6G in the 653~660nm region.

Key Words: Dye laser, Cu vapor laser, Nd:YAG laser, Laser efficiency, Dye mixture

1. はじめに

銅蒸気レーザー励起色素レーザーが用いられる同位元素の分離プラントにおいては、その高出力化・高効率化がプラントの経済性を左右する一つのカギを握っている^{1,2)}。我々はその観点から前報³⁾において、Nd:YAGレーザーの第2高調波(SHG)を励起源として、30種類のレーザー色素の同一条件での発振効率の比較を行なった。また同時に、ローダミン6G色素レーザーをモデルにしたレート方程式の数値解析を行ない、色素レーザー発振効率を決める要因について考察した。その結果得られた主な結論は次の通りであった。

- 1) 波長532nmのNd:YAGレーザーSHGを励起源として各種色素のレーザー発振効率を測定したところ、標準にしたローダミン6Gに比べピロメテン567(発振波長556nm)は8.8%高い効率を示した。また二三のローダミン系色素(ローダミン575, ローダミン640, キトンレッド620)においても、ローダミン6Gとほぼ同等の効率を得られた。
- 2) 開発したシミュレーションコードを用いて、ローダミン6G色素レーザーの励起波長依存性を考察した結果、最適な励起波長は色素の吸収極大波長より若干長波長にあり、実験に使用した532nm励起波長はローダミン6Gに対しては最適点近くにあることがわかった。

本論文はその研究の続報で、前回の波長532nmのみでの

励起実験に対して今回は、銅蒸気レーザーのグリーンとイエローの発振線に対応する波長511nm及び578nmを加え、同一条件で3波長の励起に対する発振効率を測定し、理論解析結果との比較を行なった。ローダミン6Gが578nm光を吸収しないのに対して、銅蒸気レーザーの2波長を有効に利用できる色素を用いれば、総合的にローダミン6Gより高い効率を得られることを実験と解析により明らかにした。また、2種類の色素を混合した場合には、励起波長に対する吸収スペクトルの不整合が補正できることを利用し、532nm励起に対して640nm付近の発振波長域でローダミン6G(発振波長570nm)とほぼ同程度の効率を実現した。

2. 発振効率の励起波長依存性

高効率大出力のパルス色素レーザーの励起源としては、現在銅蒸気レーザー励起色素レーザーが最も実用的であるが、将来は固体化されたNd:YAGレーザーのSHGも有望である。銅蒸気レーザーとNd:YAGレーザーではビームパターンやパルス幅が異なるので、色素の発振効率を厳密に比較するのは困難である。そこで我々はFig.1に示したような色素レーザーを励起源として、511, 532, 578nmの3波長における色素の発振効率を同一に近い条件で測定できる装置を試作した。

Fig.1の装置の構成は、まずフラッシュランプ励起Qス

イッチNd:YAGレーザーの第3高調波(355nm, Spectra Physics GCR-12)で一段目の色素レーザーを励起する。この色素レーザーは2個の石英プリズムで同調する。色素セル(長さ10mm)を横にして上方向から励起したのは、次段の効率測定用色素レーザーへの励起ビームパターンを左右対称にするためである。

一段目のレーザーに使用した色素は、波長511nm用にはクマリン500(濃度 10^{-3} mol/l), 532nm用にはクマリン540A(濃度 4×10^{-3} mol/l), 578nm用にはローダミン6G(濃度 2×10^{-3} mol/l)をいずれもエタノールに溶いて用いた。発振のスペクトル幅はいずれの波長でも1.8nm以下であった。出力は25mJのTHG励起に対していずれも4mJ程度が得られた。これは色素の発振効率を十分飽和域で測定できる値である。パルス幅は5~6ns, 繰り返しは10Hzである。

効率測定用色素レーザーは前回と同様, アラインメントに左右されにくいシンプルな構成である。一段目の色素レーザーからの出力ビームは約 1×10 mmのスポットサイズに整形して, 10×10 mm²の石英セルに横方向から入射させた。共振器はアルミ蒸着鏡と無コート石英平行板よりなる110mm間隔の平行平板型である。セルは端面反

射の影響を受けないよう若干傾けて配置し, 溶液は小型スターラーで常時かき混ぜている。

励起光や発振光のパルスエネルギーは相互に校正された2台の焦電型ジュールメーター(Gentec社, ED-200とED-100)とで測定した。発振波長は小型のモノクロメーター(島津UV-160A)を用いて掃引し, 発振スペクトルの中心波長より求めた。

効率測定は前回高い発振効率を示した約10種類の色素について行ない, Table Iの結果を得た。ここで発振効率とはセルの直前で測った励起光エネルギーに対する発振出力光エネルギーの比である。発振効率は濃度によって変化するので, まず濃度を変化させて効率を測定し, 最大効率が得られた濃度(これを最適濃度と呼ぶ)において効率と発振波長を求めた。その際効率は励起光のエネルギーによっても変化するが, 前回述べたように入力1.5~2mJ以上ではほぼ一定値に飽和するので, Table Iに示した値はその飽和値である。テストした色素の溶媒には特に断わりがない場合は全てエタノールを使用している。

Table IでNd:YAGレーザーのSHGに対応する波長532nm励起について, 効率の欄にカッコで示した値は, 前回Nd:

Fig.1 Dye laser for efficiency measurement at three different pumping wavelengths.

Table I Laser efficiencies measured for three different pumping wavelength.

Dye	511nm pumping			532nm pumping		578nm pumping	
	Concentration (mol/l)	Efficiency (%)	Wavelength (nm)	Concentration (mol/l)	Efficiency (%)	Concentration (mol/l)	Efficiency (%)
[Rhodamine dyes]							
Rhodamine 6G	1.0×10^{-3}	46.1	577	2.8×10^{-4}	52.1 (52.6)	-	-
Rhodamine 575	5.0×10^{-4}	46.8	555.5	3.5×10^{-4}	47.5 (52.6)	-	-
Rhodamine 610	3.3×10^{-4}	35.6	593	1.2×10^{-3}	44.8 (44.0)	8.0×10^{-4}	45.2
Rhodamine 640	1.7×10^{-3}	31.5	612	9.0×10^{-4}	50.5 (52.6)	4.0×10^{-4}	51.5
Sulforhodamine 640	5.6×10^{-4}	28.4	612	5.6×10^{-4}	42.2 (45.3)	1.2×10^{-4}	43.9
Kiton Red 620	6.0×10^{-4}	35.4	591	4.4×10^{-4}	48.5 (50.3)	1.0×10^{-3}	41.5
[Styryl dyes]							
DCM*	2.5×10^{-3}	38.0	647.5	2.0×10^{-3}	46.1 (45.9)	6.7×10^{-3}	12.1
[Pyrromethene dyes]							
Pyrromethene 567	3.3×10^{-4}	61.2	550	1.0×10^{-3}	61.6 (61.4)	-	-
Pyrromethene 556*	3.9×10^{-3}	39.3	557	4.0×10^{-3}	39.8 (45.8)	-	-
Pyrromethene 556**	8.0×10^{-3}	48.2	548.5	-	-	-	-
Pyrromethene 546*	3.0×10^{-3}	45.5	535.8	-	-	-	-

() shows the previous result by Nd:YAG (SHG) laser pumping.³⁾ Solvent: *DMSO, ** ethylene glycol, and others ethanol.

YAGレーザーの直接励起により測定した効率である³⁾。今回の色素レーザー励起による値とよく一致していることから、測定された効率が信頼性のある値であることを確認した。日において同一条件で繰り返し測定したデータから、測定した効率値は±2%程度以内の精度で有意であると考えられる。

波長578nm励起に対してはローダミン6Gと575, 及びピロメテン系の3色素は吸収が不完全で発振しなかった。

3. 励起波長依存性についての考察

前報³⁾で報告したローダミン6Gレーザーを解析するシミュレーションコードを用いてTable Iの結果を考察しよう。

開発したコードの詳細は前報にあるので、ここでは基本方程式のみを示す。

$$\frac{1}{c} \frac{\partial I^\pm}{\partial t} + \frac{\partial I^\pm}{\partial z} = (\sigma_e n_1 - \sigma_a n_0 - \sigma_s n_1 - \sigma_l n_3) I^\pm + \frac{n_1}{\tau} f \quad (1)$$

$$\frac{dn_1}{dt} = \frac{\sigma_{ap} n_0}{h\nu_p} I_p - \frac{\sigma_e n_1 - \sigma_a n_0}{h\nu} I - k_{ST} n_1 - \frac{n_1}{\tau} \quad (2)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = k_{ST} n_1 - \frac{n_3}{\tau_T} \quad (3)$$

$$\frac{dI_p}{dt} = W - (\sigma_{ap} n_0 + \sigma_{sp} n_1) c I_p \quad (4)$$

ここで n_0, n_1, n_3 はそれぞれ基底一重項, 励起一重項, 三重項準位の色素分子密度, $\sigma_e, \sigma_a, \sigma_s, \sigma_l$ はそれぞれ誘導放出, レーザー光及び励起光に対する基底及び励起一重項準位からの吸収, 励起三重項吸収の断面積であり, σ_{ap}, σ_{sp} は励起光に対する基底及び励起一重項準位からの吸収断面積である。 τ, τ_T は一重項および三重項の寿命, k_{ST} は項間交差率, c は光速, f は蛍光の発振モードへの結合率である。また I^+, I^- は共振器間の左右に進む光の強度であり, $z=0$ と L において $I^-(L, t) = R_0 I^+(L, t)$, $I^+(0, t) = R_e I^-(0, t)$ の境界条件を入れた。ここで R_0 は出力鏡の反射率, R_e はそれ以外の共振損失をあたえる等価反射率で, これをフィッティングパラメーターにとり, 実験との比較から $R_e = 60\%$ としている。

セル内の励起光強度 I_p および式(4)の励起率 W の項はいずれもセルのある断面積について一様と仮定した。つまりこのシミュレーションは光軸である z 方向の変化のみを考慮した一次元モデルである。シミュレーションを行なう上で色素分子の分光パラメーターの選び方は重要であるが, これまでこのコードを用い, ローダミン6Gについて増幅器の解析⁴⁾と前報での発振器の解析³⁾を通じて実験との比較を種々行ない, パラメーターの最適化に努めてきた。特に色素の濃度特性の解析では, 横方向励起ではセルの奥行き方向にすべて一様とする一次元モデルでは誤差が生じることが懸念されたが, 「励起光はセル内の一定の厚さでのみ一様に吸収され, その区間で吸収されなかった分は失われてしまう」という仮定で計算した結果, 2×10^{-5} から 10^{-2} mol/l の非常に広い濃度域で実験とよく合う結果が得

Fig.2 Analytical result of pumping wavelength dependences of efficiency of Rhodamine 6G laser on dye concentration.³⁾

Fig.3 Normalized absorption cross sections of Rhodamine dyes.

られることを前報に示した³⁾。

さて, このコードを用いたローダミン6Gレーザーの発振効率の励起波長依存性についてはすでに前報で計算を行なった。それを用いて今回の実験結果を考察するために, Fig.2にその解析結果を再掲する。色素濃度が低い場合には励起波長と発振効率の関係はほとんどローダミン6Gの吸収スペクトルに近い形をとるが, 濃度を上げると長波長・短波長に広がってフラットに近づく。各励起波長で濃度の最適化を行なってゆくと, これらの曲線の包絡線がローダミン6Gの効率の励起波長依存性を与えることになる。

このグラフから, 効率の励起波長依存性は(1)励起波長に対する吸収断面積の大きさと(2)励起波長と発振波長の差の2因子によって主に決まっていることがわかる。(2)の因子は励起光子と発振光子のエネルギー比 $h\nu/h\nu_p = \nu/\nu_p$ で与えられるから, 長波長ほどいい。その結果, 最適な励起波長はその色素の吸収極大波長より若干長波長にくる。

Fig.3にTable Iのローダミン系色素の吸収スペクトルを示す。ただし吸収断面積は極大波長で規格化している。Table Iの実験結果によれば, ローダミン6Gの511nm励起による発振効率が532nm励起の場合より悪いのは, Fig.2の結果と定量的にもほぼ一致している。

Table IIにおいて, ローダミン575以外のローダミン系色素はすべてローダミン6Gより長波長に吸収極大があるため, 511nm励起の効率は532nm励起の効率と比べるとかなりことなり悪くなっている。そのかわり, 578nm励起が可能になり, 特にローダミン640は532nm励起以上の効率が得

られた。ローダミン575のみは吸収極大が短波長にシフトしており、511nm励起の方が有利にもかかわらず、実験結果では532nm励起と同程度の効率しか得られていないのは、上述の(2)の因子が利いているのであろう。最近、システムの固体化をめざして銅蒸気レーザーをNd:YAGレーザーに置き換える動きがある。上述の結果によれば、ローダミン系色素は511nm励起よりも532nm励起に向いており、このことは銅蒸気レーザーをNd:YAGレーザーに置き換える際のポジティブな要因となる。

一方、今回テストした3種のピロメテン系色素の吸収スペクトルは前報³⁾のFig.5に示してある。吸収極大波長はローダミン6G>ピロメテン567>556>546の順に短波長へシフトしている。ローダミン6Gより高い効率を示したピロメテン567をはじめ、他の二種も532nm励起では吸収極大が短波長すぎて整合性が悪いので、511nm励起では大幅な効率改善が期待された。しかし、ピロメテン567については両者の効率はほぼ同等であった。これは前述の(1)と(2)の因子がつりあった結果であろう。

他の2つの色素については511nmの方が高い効率を得られたが、ローダミン6Gを越えるには至らなかった。Guggenheimerらはアルゴンレーザー(all line)励起のCW発振で、ピロメテン556は567より高い効率を得られたと報告している⁵⁾。溶媒をエチレングリコールに変え、条件を彼等の実験に近づけてみたが、効率は48.2%にとどまった。

4. 銅蒸気レーザー二波長同時励起

Table Iの実験では、銅蒸気レーザーの2波長については独立に効率測定を行なった。そこで、511nmと578nm光が例えば7:3の比であった時の総合発振効率 η_{578} を、それぞれの波長での効率 $0.7\eta_{511}$ と $0.3\eta_{578}$ の値から単純な重ねあわせにより

$$\eta_0 = 0.7\eta_{511} + 0.3\eta_{578} \quad (5)$$

で計算してみると、Table IIを得る。

Table IIによると、578nmの励起光が無駄になるローダミン6Gに比べ、それより吸収スペクトルが長波長にある色素は2波長同時励起した際に高い総合効率が期待できる。

しかしながら、総合効率が式(5)によって求められるかどうか疑問が残る。そこで先のシミュレーションコードを2波長同時励起に修正して、そのことの妥当性を検討した。

2波長同時励起に対しては、基本方程式(1)～(4)のうち式(2)および(4)に次の修正を施した。

Table II Laser efficiencies measured for three different pumping wavelength.

Dye	η_{511}	η_{578}	η_0
Rhodamine 6G	46.1%	0%	32.3%
Rhodamine 610	35.6%	45.2%	38.5%
Rhodamine 640	31.5%	51.5%	37.5%
Sulforhodamine 640	28.4%	43.9%	33.1%
Kiton Red	35.4%	41.5%	37.4%

Fig.4 Absorption spectrum of Rhodamine 6G, and combination of two pumping wavelengths used for calculation.

$$\frac{dn_1}{dt} = \frac{\sigma_{ap1}n_0}{h\nu_{p1}} I_{p1} + \frac{\sigma_{ap2}n_0}{h\nu_{p2}} I_{p2} - \frac{\sigma_e n_1 - \sigma_a n_0}{h\nu} I - k_{st} n_1 - \frac{n_1}{\tau} \quad (6)$$

$$\frac{dI_{p1}}{dt} = W_1 - (\sigma_{ap1}n_0 + \sigma_{sp1}n_1) c I_{p1} \quad (7)$$

$$\frac{dI_{p2}}{dt} = W_2 - (\sigma_{ap2}n_0 + \sigma_{sp2}n_1) c I_{p2} \quad (8)$$

ここでサフィックス1,2は2つの波長に対応するものとする。したがって511nmと578nm光の強度比を7:3と仮定すると、 $W_1 = 0.7W$, $W_2 = 0.3W$ となる。式(6)～(8)は、励起一重項の種々の準位に励起された分子は、すべて短い時間内に励起一重項の基底準位に緩和した後、レーザー遷移が起ることから成立する。

数値計算をするにあたってローダミン6Gは578nmに吸収がないため、Fig.4に示すような仮想的なモデルを考えた。Fig.4の吸収スペクトルはローダミン6Gのものであるが、このスペクトルは動かさずに、励起2波長差を578-511=70nmで一定に保ちつつ、その組合わせをAa(460+530nm), Bb(470+540nm), Cc(480+550nm), Dd(490+560nm), Ee(500+570nm)と変化させた。ここで短い波長G波長、長い波長をY波長と呼ぶことにする。このモデルは励起を銅蒸気レーザーの2波長に固定して考えると、ローダミン6Gと同等の分光パラメーターを持ち、その吸収・蛍光スペクトルがそれぞれ50nm(Aa), 40nm(Bb), 30nm(Cc), 20nm(Dd), 10nm(Ee)づつ長波長へシフトした仮想的な色素を考えたのに等しい。

Table IIIに濃度 $10^{-3}\text{mol}/\ell$ で上述のAa～Eeについてそれぞれ1波長独立で求めた効率 η_G , η_Y から式(5)を用いて計算した総合効率 η_0 と、2波長同時励起のシミュレーションによって得られた結果とを示す。両者は非常によく一致している。しかし、G波長とY波長では最適濃度が違うのに式(5)では同一濃度で計算しているので、それによる誤差を見積もるために、さらに色素濃度を $2 \times 10^{-4}\text{mol}/\ell$ の範囲で動かして同様の計算を行ってみたが、両者は $\pm 5\%$ 以内の精度で一致し、式(5)の妥当性が確かめられた。

Figure 5は2波長同時励起のコードにより、総合効率の変化を計算した結果をまとめたものである。高い色素濃度ではCcの場合が最も高い効率を示す。点線はローダミン

Table III Calculation of overall efficiencies for Aa~Ee by two methods.

	Pump wavelength	Efficiency			
		G + Y	G only	Y only	Simulation of simultaneous Calculation by eq. (5) G + Y pumping
A a	460 + 530nm	15.3%	53.9%	26.9%	26.8%
B b	470 + 540	26.8	54.9	35.2	35.3
C c	480 + 550	39.7	51.8	43.3	43.3
D d	490 + 560	46.6	20.1	38.7	38.7
E e	500 + 570	49.0	1.6	34.8	34.2

Fig.5 Calculation of overall efficiency for various combinations of G and Y wavelengths.

6Gを単独で2波長励起した場合の総合効率である。これはローダミン6Gより吸収極大波長が約30nm長波長にある色素に相当するが、Fig.3を見るとキトンレッド620やローダミン610がそれに近い。Fig.3によるとローダミン系色素はいずれもスペクトルの形は一定に近いが、吸収スペクトルの幅がもう少し広い色素の方が、当然ながら2波長同時励起の場合は有利になる。

Figure 5で低濃度でCcよりもむしろEeやBbの方が効率が高い場合があるのは、2波長同時励起よりも、単独波長励起の効率がそれを上まわったことによる。

5. 色素混合の効果

異なるスペクトルを持った2種類のレーザー色素を混合する実験はこれまでも数多くの報告されている⁶⁻⁸⁾。混合によって期待される効果としては次の3つが考えられる。

- 1) 発振波長に対して励起波長が短波長にあり過ぎる場合、吸収の中継ぎをして励起効率を高める。
- 2) 2つの色素の発光スペクトルを組合わせて、同調域を拡げる。
- 3) 2つの色素の吸収スペクトルを組合わせて、2波長(一般的には多波長)同時励起の効率を高める。

同位体分離用レーザーの観点からは1)と3)とが興味深い。本節では1)の効果を用いて「ローダミン6Gより長波長で、それと同等の効率のレーザー発振できないか」という課題に取り組んだ。組み合わせる2つの色素のうち短波長側をドナー、長波長側をアクセプターと呼ぶことにする。励起光は主にドナー色素によって吸収された後、励起エネルギーがアクセプターに伝搬され、レーザー光はアクセプター色素が放出する。励起エネルギー伝搬は放出・再吸収の放射過程や双極子-双極子相互作用による無放射過程などによると考えられている⁹⁾。

Fig.6 Output energy and laser wavelengths for various mixing ratios of Rhodamine 6G and Cresyl violet 670. (Pumping energy is 3.88mJ at 532nm)

Fig.7 Output energy and laser wavelengths for various mixing ratios of Rhodamine 640 and Cresyl violet 670. (Pumping energy is 3.88mJ at 532nm)

同位体分離においてローダミン6Gより長い波長の光が必要な場合、Table Iに示したように、波長600~620nmぐらいまではローダミン640やキトンレッド620でカバーできるが、640nm台になると効率の良いローダミン系色素が見当たらない。532nm励起による前回の実験では、DCM (DMSO溶媒で波長650nm、効率45.9%)、クレジルバイオレット670 (波長646nmで32.6%)、LD700 (波長704nmで35.1%)などが長波長で効率の良い色素であった³⁾。

今回は励起波長を532nmに固定し、種々の色素の混合実験を行なった結果、ローダミン6G+クレジルバイオレット670およびローダミン640+クレジルバイオレット670の組み合わせに対して1)の効果がみられた。クレジルバイオレット670の吸収極大波長は600nmにあり、532nmに対する吸収は小さいために、発振効率32.6%と小さかった。Fig.6とFig.7は、この2種類の組み合わせに対して混合比を変えた時の出力と発振中心波長である。その際、クレジルバイオレット670の濃度は単独動作時の最適値 2×10^{-4} mol/lに固定し、ドナー色素の濃度を横軸にとっている。点線はアクセプター単独の時の出力でそれを越えた分が混合による

Table IV Measured laser efficiency and wavelength at optimum mixing ratio.

Name of dye		Optimum concentration	Laser efficiency	Central wavelength	Tunable range
Donor dye	Acceptor dye	(mol/l)	(%)	(nm)	(nm)
	Rhodamine 6G	2×10^{-4}	52.6	570	550 ~ 590
	Rhodamine 640	4×10^{-4}	52.6	615	603 ~ 645
	Cresyl Vilet 670	2×10^{-4}	32.6	646	624 ~ 659
Rhodamine 6G	Cresyl Vilet 670	$4 \times 10^{-4} / 2 \times 10^{-4}$	38.6	640	623 ~ 659
Rhodamine 640	Cresyl Vilet 670	$7 \times 10^{-4} / 2 \times 10^{-4}$	50.3	645	622 ~ 680

増強効果である。Fig.6で波長が二つに分離しているのは、ドナーとアクセプターが独立に発振しているためであるが、これは同調を行なうと一本にすることができる。

Table IVに今回の実験で得られた最適な濃度における効率と発振波長をまとめた。右側の同調域は共振器に斜入射型回折格子を挿入して測定したもので、それ以外は非同調時のデータである。このようにローダミン640とクレジルバイオレット670の混合では波長645nmで50.3%というローダミン6Gに匹敵する効率を実現するとともに、先の2)で述べた同調域の拡大効果も得られている。

6. むすび

大出力パルス色素レーザーの励起源として銅蒸気レーザー（波長511, 578nm）とNd:YAGレーザーの第2高調波（532nm）を想定し、その効率改善について種々実験および理論的検討を行なった結果、次のような知見が得られた。

- 1) 与えられた色素の最適励起波長は、その波長での吸収が大きいことと励起と発振波長の差が小さいことの2因子で主に決まり、吸収極大波長より若干長波長になる。
- 2) ローダミン6Gやそれより吸収極大が長波長にあるローダミン系色素は532nm励起の方が511nm励起より効率が低い。
- 3) 上記の観点から吸収極大がローダミン6Gより短波長にあるピロメテン系色素は532nmより511nm励起の場合に効率が改善したが、532nmでローダミン系より高い効率

を示したピロメテン567の511nm励起ではそれと同程度（61.2%）の効率であった。

- 4) ローダミン610, 640, キトンレッド620, スルフォローダミン640などローダミン6Gより吸収極大が長波長にある色素は、511nmと578nmの2波長同時励起に対してローダミン6Gより高い総合効率を示した。
- 5) クレジルバイオレット670にローダミン640を混入すると、励起波長532nmでは635~660nmの広い波長域にわたってローダミン6Gと同等の高い発振効率が実現できた。

これらの結果は、今後の同位元素の分離プラントの高効率化に寄与する重要な知見を与えるものと思われる。

参考文献

- 1) レーザー研究「レーザーウラン濃縮特集号」**14** (1986) 397.
- 2) 森岡 昇, 浜田 博義, 新井 昇, 佐藤 康彦, 金井 英次, 藤田尚徳: 応用物理 **58** (1989) 249.
- 3) 前田 三男, 内海 通弘, 高尾 隆之, 興 雄司, 五十嵐 香, 島本 幸次郎: レーザー研究 **23** (1995) 752.
- 4) 前田 三男, 内海 通弘: レーザー研究 **18** (1990) 474.
- 5) S. G. Guggenheimer, J. H. Boyer, K. Thangaraj, M. Shah, M.-L. Soong, and T. G. Pavlopoulos: Appl. Opt. **32** (1993) 3942.
- 6) C. E. Moeller, C. M. Ver, and A. H. Adelman: Appl. Phys. Lett. **18** (1971) 278.
- 7) K. Nagashima and T. Asakura: Opt. Comm. **19** (1976) 7.
- 8) P. Burlamacchi and D. Cutter: Opt. Comm. **22** (1977) 283.
- 9) 長島 健次: 電子通信学会論文誌 **J64** (198) 645.