



難分析長寿命核種分析のための 波長安定化レーザーの開発

(1)リトロー型外部共振器半導体レーザーの製作

2004年10月

宮部 昌文・小田 晃一*・大場 正規
加藤 政明・若井田 育夫・渡部 和男

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2004

編集兼発行 日本原子力研究所

難分析長寿命核種分析のための波長安定化レーザーの開発

(1) リトロー型外部共振器半導体レーザーの製作

日本原子力研究所東海研究所環境科学部研究部

宮部 昌文・小田 晃一^{*}・大場 正規・加藤 政明・若井田 育夫・渡部 和男

(2004年9月17日受理)

多くの難分析核種が含まれる放射性廃棄物の分析方法の開発は、廃棄物のクリアランスの制度化に向けて、今後重要になることが予想される。本研究では、こうした難分析核種の分析に多段階共鳴イオン化質量分析法を適用することを目指して、その光源となる波長可変、外部共振器半導体レーザーを設計、製作した。これに半導体の種類や内部構造が異なる、青紫、赤色、赤外の各半導体レーザー素子を組み込み、発振波長や出力パワーの動作電流や動作温度による変化など、レーザーを動作、制御するための基本的な発振特性を調べた。また、回折格子の回折効率や駆動電流の電流補償量などを調整して、安定した単一縦モード発振を得る方法を確立した。これにより、いずれのレーザー素子でも、約 100GHz の範囲で、モードホップの無い連続波長掃引を実現した。また、製作したレーザーを用いてネオンやルビジウム、カルシウム原子のドップラーフリー分光を行い、レーザーの発振幅を評価したほか、同位体シフトや超微細構造分裂幅の測定により、本レーザーが分光分析に必要な性能を有することを確認した。

Development of Frequency Stabilized Laser System for Long-lived Isotope Analysis

(1) Development of Littrow Configuration Extended Cavity Diode Laser

Masabumi MIYABE, Kouichi ODA*, Masaki OBA, Masaaki KATO, Ikuo WAKAIDA and Kazuo WATANABE

Department of Environmental Sciences
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 17, 2004)

In nuclear waste materials there are various radionuclides to which standard analytical techniques are difficult to be applied. The analysis of such nuclides is expected to be of more importance in near future considering that the clearance system permitting the recycling of the waste materials without regulatory control will be adopted in Japan. We are developing an analytical technique where such nuclides are ionized and mass-analyzed using multi-step resonance ionization mass spectrometry.

We have developed an external cavity diode laser applicable to the analysis. The wavelength and output power dependence on injection current and temperature were investigated for various types of laser diodes. In addition, the diffraction efficiency of grating and the degree of injection current compensation were optimized. Based on the data, we have obtained a suitable condition to operate the ECDL in stable single-mode oscillation. As a result, the continuous wavelength scanning range without mode-hop as large as about 100 GHz was realized for infrared, red and violet laser diodes. To demonstrate the applicability of the ECDL, we performed various Doppler-free spectroscopy of Ne, Rb and Ca atoms using the ECDL as a light source. The linewidth of the measured Doppler-free features was used to evaluate the bandwidth of the developed ECDL. Also, the reasonable agreement of the measured isotope shift and HFS splitting with the reported values demonstrated that the developed ECDL is much applicable to a highly precise laser spectroscopy as well as a laser trace analysis.

Keywords : Diode Laser, ECDL, Trace Analysis, Optogalvanic Spectroscopy, Saturated Absorption Spectroscopy, Resonance Ionization Mass Spectrometry

* Nagaoka University of Technology

目 次

1.はじめに.....	1
2.外部共振器半導体レーザーの原理.....	3
2.1 半導体レーザー素子.....	3
2.2 Littrow 共振器型 ECDL	5
2.3 Littman-Metcalf 共振器型 ECDL	6
2.4 フィードフォワード電流補償	7
3. ECDL の設計および製作.....	9
3.1 設計した ECDL の構造と特徴	9
3.2 ECDL 制御用電子回路.....	10
3.3 ECDL の組立と調整の詳細.....	11
3.4 ECDL の製作コスト.....	12
4. 製作した ECDL の発振特性	13
4.1 フリーランニング時のレーザー素子特性	13
4.2 外部共振時の発振特性	17
4.3 フィードフォワード補償率の最適化	22
5. 製作した ECDL による分光測定.....	24
5.1 赤色 ECDL を用いたドップラーフリーガルバノ分光	25
5.2 赤外 ECDL を用いたドップラーフリー飽和吸収分光	27
5.3 青紫 ECDL を用いたドップラーフリー蛍光分光、飽和吸収分光	28
5.4 製作した ECDL の性能評価と今後の展望	30
6. 結論	32
謝辞	32
参考文献	33

Contents

1.	Introduction.....	1
2.	Principle of the Extended Cavity Diode Laser.....	3
2.1	Laser Diode	3
2.2	Littrow-type ECDL	5
2.3	Littman Metcalf -type ECDL.....	6
2.4	Feedforward Current Compensation Technique.....	7
3.	Design and Construction of New ECDL	9
3.1	Design of New ECDL.....	9
3.2	Control Circuit for ECDL.....	10
3.3	Details of Construction of ECDL	11
3.4	Cost Evaluation for Constructing ECDL.....	12
4.	Fundamental Characteristics of New ECDL	13
4.1	Characteristics under Free Running Operation	13
4.2	Characteristics under External Cavity Oscillation.....	17
4.3	Optimization of Feedforward Compensation.....	22
5.	Demonstration of Doppler-free Spectroscopy Using New ECDL	24
5.1	Doppler-free Optogalvanic Spectroscopy of Neon Using Red ECDL	25
5.2	Doppler-free Saturated Absorption Spectroscopy of Rubidium Using Infrared ECDL	27
5.3	Doppler-free Absorption and Fluorescence Spectroscopy Using Violet ECDL.....	28
5.4	Bandwidth of New ECDL and Outlook of this Study	30
6.	Conclusions.....	32
	Acknowledgement.....	32
	References.....	33

1 はじめに

半導体レーザーは1962年に最初の発振が報告されて以来、記録媒体や光ファイバー通信への応用を中心に、様々な波長やパワーの素子が開発されてきた。さらに、その波長や出力を制御する様々な手法も開発され、これにより、リング共振器色素レーザーなどの高価で、調整に熟練を要するレーザーを必要とした精密分光や高感度分光分析が、半導体レーザーを使って簡単に行えるようになりつつある¹⁾⁹⁾。一般に、レーザーを用いた分光分析には、(a)高輝度性を生かしてイオン源や蒸発源に用いるものと、(b)高い波長分解能を生かして元素、同位体選択性的な光化学反応を誘起するものとがあるが、出力の小さな半導体レーザーは後者に適した光源である。こうした半導体レーザーの分光分析への応用には、幾つかの利点が考えられる。

- (1) 波長幅の狭い単一縦モード発振のため、特定の核種だけを選択的に共鳴励起できる。
- (2) 連続発振のため、連続的に発生するビーム状の原子と無駄なく反応させられる。
- (3) 小型のため、可搬型装置に応用できる。
- (4) 調整部位が少なく、ほとんどメンテナンス不要である。
- (5) 多段階、多元素同時分析のために、多数のレーザーを用いたとしても導入、維持コストが小さい。
- (6) 短波長化が進んでおり将来性が高い。

これらの利点のため、すでに、原子吸光分析(Atomic Absorption Spectrometry)やレーザー誘起イオン化分析(Laser Enhanced Ionization Spectrometry)など、一部の分析分野では半導体レーザーの利用がかなり進んでいる⁶⁾⁸⁾。また小型可搬分析装置への応用でも、オーフリッジ研究所のグループが、ウラン同位体比分析のためのスクリーニング装置を、半導体レーザーと光ガルバノ分光法を用いて開発している⁹⁾。さらに最近では、半導体レーザーを用いて様々な環境汚染物質を検出する小型可搬型センサーも開発されている^{9),10)}。

半導体レーザーにはこうした利点があるものの、その応用を図るうえでは次のような半導体レーザー特有の発振特性にも留意することが必要となる。

- (1) 利用できる波長域が赤外～赤色(1500～630nm)、青紫(480～380nm)に限られる。
- (2) 発振波長が注入電流や温度で変化する。一個の素子で発振できる波長範囲は青紫域の素子で5nm程度、近赤外域の素子で30nm程度である。但し、波長が連続的に変化する範囲は狭く、不連続な変化(モードホップ)を繰り返しながら変化する。
- (3) 本来の発振幅は1MHz以下と狭いが、駆動電流の電気的なノイズや振動等の外乱によって、発振波長がゆらぐため(ジッター)、数秒間平均した発振幅は数10MHzとなる。
- (4) 光出力が数100mW以上の素子は複数の縦モードが同時に発振するマルチモード発振となる。このため、高出力の単一縦モード光を得たい場合は、マスター、スレーブのレーザー素子を用いて、

注入増幅系を構成する必要がある。

特に、半導体レーザーを同位体分析に用いる場合には、同位体毎に異なる共鳴波長の光を発振させる必要から、半導体レーザーの発振波長を安定化し、任意の波長に同調する技術が不可欠である。こうした半導体レーザーの波長制御の第1段階としては、色素レーザーで開発された外部共振器の技術が利用できる^{11),12)}。外部共振器とは、誘導放出を起こすレーザー媒質に光増幅を起こさせるための光フィードバックを、本来のレーザー共振器（半導体レーザーチップなど）の外部から行う仕組みである。光フィードバックには素子自身の光を用いることもでき、ハーフミラーで反射光を素子に戻すのが最も簡単である¹³⁾。しかしこうした単純な反射光では、発振幅は狭くなるものの波長制御は難しいため、一般には、Q値の高いファブリペロ共振器などから弱い光フィードバックを行う方法や¹⁴⁾、回折格子やプリズム等の波長分散素子を用いた外部共振器により、強い光フィードバックを行う方法が利用される。このうち回折格子による外部共振器半導体レーザー(External (or Extended) Cavity Diode Laser : ECDL)は、共振器構造により、Littrow型とLittman-Metcalf型に分類される。特に、Haenschらの設計したLittrow型ECDL¹⁵⁾は、構造が簡単なわりに、高出力で安定な発振が得られることからよく利用されている。

こうした外部共振器半導体レーザーには市販品も存在するが、同位体分析で求められるような同位体ごとに異なる共鳴波長を次々に同調できる、能動的波長安定化機構を持ったECDLは市販されていない。また市販品を改造して、同位体分析用に波長の安定性や出力強度を調整することも難しい¹¹⁾。同位体分析の用途に合わせた最適化や、高次の波長安定化機構を付加するためには、そのレーザーの構造や発振特性の詳細を把握しておくことが重要である。

我々は、レーザーによる高感度同位体分析法の開発を行っているが、これまでパルスレーザーを光源とする共鳴イオン化質量分析法(RIMS)を主としてきた。しかし、先に述べた半導体レーザーの数々の利点や、他の分光分析への応用の可能性から、本研究では、RIMSに利用できる小型で操作、調整が容易なLittrow型ECDLを設計、製作した。また製作したECDLを用いて、安定動作に必要な、基本的な発振特性を測定するとともに、波長掃引に伴ってLD駆動電流を調整する電流補償の最適化を行った。さらに製作したECDLを光源として、様々なドップラーフリー分光を行い、レーザーの発振幅を評価するとともに、分光光源としての実用性を確認した。本報告では、まず第2章でECDLの原理などの基礎事項をまとめ、第3章でECDLの設計、製作方法の詳細、第4章で基本的な発振特性の測定、第5章で実際の分光への応用について述べる。

2 外部共振器半導体レーザーの原理

2.1 半導体レーザー素子

ECDL の発振特性を決める大きな要素は、レーザー素子自体の特性である。最も簡単なレーザー素子の構造は図 1(a)のような、n 型と p 型半導体クラッドを接合したホモ接合構造である。n 型クラッドを +、p 型半導体クラッドを + にして順方向バイアスを加えると、n 型に偏っていた伝導帯の電子が p 型に移動し、反転分布が形成される。この電子がホールと再結合することで、バンドギャップに相当するエネルギーの光が放出される。半導体材料は一般に屈折率が大きいので、接合面の両端面を劈開または研磨して平行面にすると、その面が鏡となってファブリペロ共振器が形成され、誘導放出光の増幅によりレーザー発振が起こる。

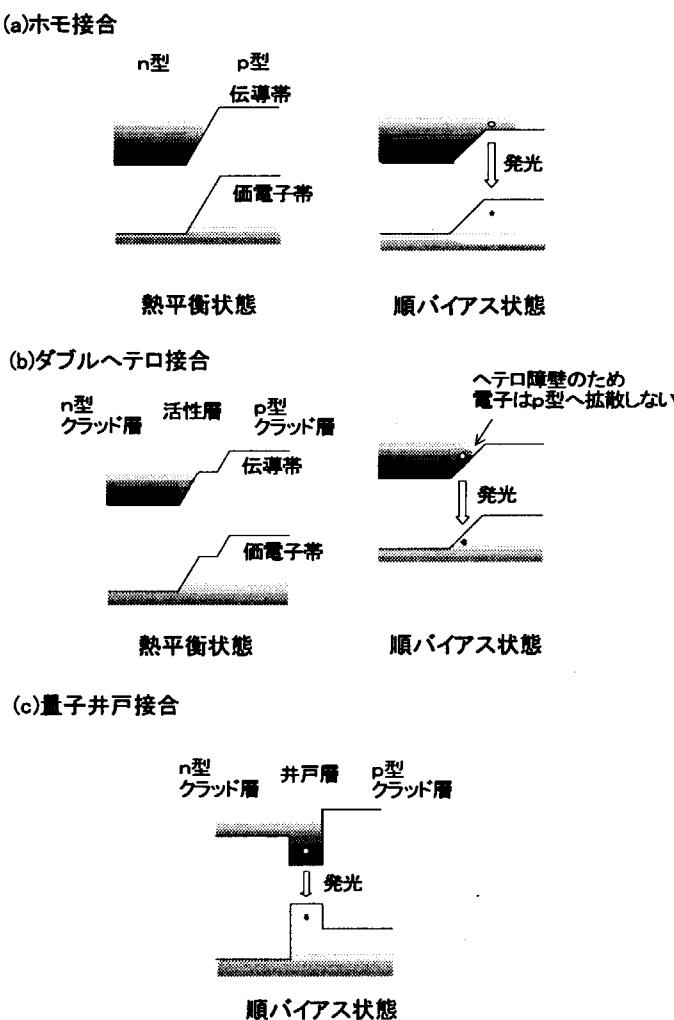


図 1 代表的な半導体レーザーのバンド構造と発振の原理

現在市販されている連続発振レーザー素子では、このホモ接合に比べてさらに光出力の効率を上げる構造（ダブルヘテロ構造：図 1(b)）が用いられている。これは n 型、p 型半導体クラッド層の間に、ク

ラッド層よりバンドギャップを小さくした活性層を挟んだものである。順バイアスで活性層に電子、ホールが注入されると、各層間にヘテロ障壁と呼ばれるポテンシャル障壁ができ、電子やホールなどのキャリアが活性層に効率よく閉じ込められる。さらに活性層に屈折率の高い材料を用いると、放出される光も活性層に効率よく閉じ込められる。この2つの効果により強い増幅作用が得られる。さらに最近の半導体レーザーでは、厚さ数100オングストロームの薄い半導体層を重ねて活性層を形成した量子井戸構造(図1(c))も採用されている。こうすると、量子効果により活性層の電子が離散的なエネルギーを持つため、接合面に特定のエネルギーを持つ電子やホールが集まり、より波長幅の狭い、高効率のレーザー発振が得られる。またこの構造は、結晶を脆くするアルミニウムの含有量を増やすことなく様々な発振波長のLD素子が作れるという利点もあるため、近年急速に普及している。

発振波長は活性層のバンドギャップで決まるが、半導体材料の元素や組成比、構造を変えることで、様々な波長のレーザーが作られている。現在市販されている半導体レーザー素子の種類と発振波長域は表1の通りである。本研究では、表の第2~4分類のレーザー素子を便宜上、赤外、赤色、青紫レーザーと呼んで区別する。

表1 主な半導体レーザー材料と発振波長域

分類	波長域	半導体材料
1	1100~1650nm	In _{1-x} Ga _x As _y P _{1-y} 系
2	620~890nm(赤外)	Ga _{1-x} Al _x As系
3	630~690nm(赤色)	GaAlInP系
4	370~480nm(青紫)	GaN系

バンドギャップは温度でも変わるので、発振波長も温度依存性を持つ。GaAlAs系レーザーの代表的な温度依存性は約0.23nm/°C¹¹⁾、一方、GaN系レーザーは約0.05nm/°C¹⁶⁾で、いずれも温度の上昇に伴い長波長にシフトする。

レーザーの発振状態では、共振器を形成する1組の鏡の間を往復する光が干渉しあい、次式で表される定在波が生じる。

$$q \frac{\lambda}{2n} = L \quad (q: \text{定在波の次数}, n: \text{媒質の屈折率}, L: \text{共振器長}) \quad (2.1)$$

半導体レーザーの代表的な値としてλ=690nm, n=3.5, L=0.25mmを代入すると、定在波の次数はq=2536と大きな値となる。qが1だけ異なる定在波の周波数差、即ち、縦モード間隔(Free Spectral Range=FSR)は

$$FSR = \frac{c}{q\lambda} = \frac{c}{2nL} \quad (c: \text{光速}) \quad (2.2)$$

となるので、先の例では FSR=170GHz となる。バンドギャップで決まる媒質のゲイン曲線はこれより十分広いので、複数の定在波が同時に発振可能（マルチモード発振）である。しかし実際には、2.4 節で述べるように出射窓と素子後方端面間に形成される内部共振器などのモード曲線も影響するため、利得が最大になる縦モードのみが成長し発振する（単一縦モード発振）。

単一縦モード発振時のレーザーの線幅は様々な因子によって決まるが、最も基本的な効果は次の Schawlow-Towns の式で表せる¹⁷⁾。

$$\Delta\nu_{FWHM} = \frac{h\nu}{8\pi P_0} \left(\frac{c}{nL} \right)^2 \left[aL + \ln\left(\frac{1}{R}\right) \right] \ln\left(\frac{1}{R}\right) n_{sp} (1 + \alpha^2) \quad (2.3)$$

但し P_0 :出力、 L :キャビティ長、 R :端面反射率、 a :キャビティ内の分散ロス、 c/n :群速度、 n_{sp} :自発放出係数(ほぼ 1)、 α :キャリア密度に依存する屈折率である。典型的な赤外半導体レーザー素子の値として、 $P_0=10mW$ 、 $L=0.3mm$ 、 $R=0.3$ 、 $\alpha=4\sim 5$ を代入すると、線幅は 1MHz 程度となる。

通常の半導体レーザー素子では、レーザー結晶の前方劈開面の反射率は 30% 程度である。この反射率に比べて無視できない強度の光が外部から注入されると、発振モードは外部からの影響を受ける（光フィードバック）。発振モードの安定性は注入パワーに依存する。外部共振器で素子自身の光を注入する場合、出力強度の 5% 程度のフィードバックでは発振が安定しないが、25% 程度では素子のゲイン曲線の中心から $\pm 6nm$ 程離れた波長でも安定に発振することが報告されている^{2), 11)}。

また、最近のレーザー素子の中には、前方端面に反射防止膜(AlO_2)、後方端面に反射率 90% 以上の高反射膜をコーティングして高出力化したものがある。このような素子は、逆に外部から光を入射させることも容易なため、外部共振器の形成が容易である。従って分光分析用 ECDL ではこうした高出力素子が適していると考えられる。さらに、素子のガラス窓を取り外し、結晶の前方劈開面に反射率 0.001 以下の無反射コーティングを行った特殊な素子も存在する。これは高価ではあるが、広い波長域で安定な高出力 ECDL を得るために有効である^{16), 18)}。また SiO_2 単層膜でも ECDL の特性が向上することが報告されている¹⁹⁾。

2.2 Littrow 共振器型 ECDL

Littrow 型共振器はレーザー媒質から出た光を回折格子に当て、その一次回折光がレーザー媒質に逆戻りするように回折格子の角度（Littrow 角）を調節することで、媒質後方端面と回折格子間にレーザー発振のための共振器を作る構造（図 2(a)）である。共振器からの光の取り出しには 0 次回折光（鏡面反射）

を用いる。このように回折格子は出力用ミラーとしても機能するため、ロスの少ない出力が得られる。回折格子による回折角度と波長の関係は次式で表せる²⁰⁾。

$$d(\sin \alpha + \sin \beta) = m\lambda \quad (2.4)$$

但し d:回折格子の格子間隔、 α :入射角、 β :回折角、m:干渉次数

Littrow 配置では、1 次回折光を入射方向に回折させるので $m=1$ で $\alpha=\beta$ となりこれを θ_i とおくと、

$$\sin \theta_i = \frac{\lambda}{2d} \quad (2.5)$$

となる。例えば、溝密度 1800 本/mm($d=0.555\mu\text{m}$)の回折格子と発振波長 690nm のレーザーでは、1 次回折光の出射方向は $2\theta=76.8^\circ$ 、溝密度 1500 本/mm($d=0.666\mu\text{m}$)の回折格子に 780nm のレーザーでは $2\theta=71.6^\circ$ 、溝密度 3600 本/mm($d=0.277\mu\text{m}$)の回折格子に 420nm のレーザーでは $2\theta=98.2^\circ$ となる。また、回折格子によるゲイン曲線の拡がり Δv_G は、回折格子面に当たるレーザースポットの空間拡がり D で決まり、次式で表せる。

$$\Delta v_G = \frac{dc}{\lambda D \cos \theta_i} \quad (2.6)$$

例えば、レーザースポット直径を $D=2.2\text{mm}$ として、波長 $\lambda=690\text{nm}$ 、入射角度 $\theta=38^\circ$ 、格子間隔 $d=0.555\mu\text{m}$ を代入すると $\Delta v_G=140\text{GHz}$ 、また $\lambda=780\text{nm}$ 、 $\theta=35.8^\circ$ 、 $d=0.666\mu\text{m}$ とすると $\Delta v_G=144\text{GHz}$ 、 $\lambda=420\text{nm}$ 、 $\theta=49.1^\circ$ 、 $d=0.277\mu\text{m}$ とすると $\Delta v_G=138\text{GHz}$ となる。これが後述する ECDL のモードホップなし連続掃引範囲のおおよその上限となる。

2.3 Littman-Metcalf 共振器型 ECDL

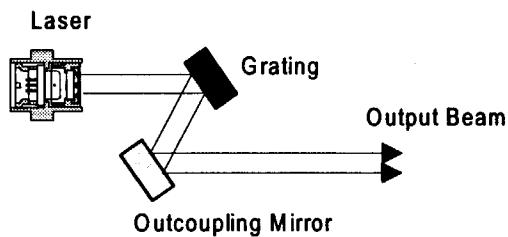
Littman 型共振器はレーザー媒質から出た光を斜入射で回折格子に当て、その 1 次回折光をチューニングミラーや第 2 の回折格子等で回折格子へ再び反射し、さらにその 1 次回折光がレーザー媒質へ戻ることによって形成される共振器構造である（図 2(b)）²¹⁾。チューニングミラー面と回折格子面、およびレーザー素子表面の 3 つの面が交差する点はピボット点と呼ばれ、この点を支点としてチューニングミラーを回転させ、その角度によって発振波長を選択する。

共振器からの光の取り出しが、Littrow 型と同様に回折格子の 0 次回折光を利用する。この共振器構造では回折格子で 2 度回折され波長選別された光が出力される。このため Littrow 型共振器に比べて、より波長幅の狭い発振が得られる特徴がある。反面、この共振器は Littrow 型より構造が複雑で機械的精度が求められること、チューニングミラーで反射された光の 0 次回折光が無駄になるため、出力効率が

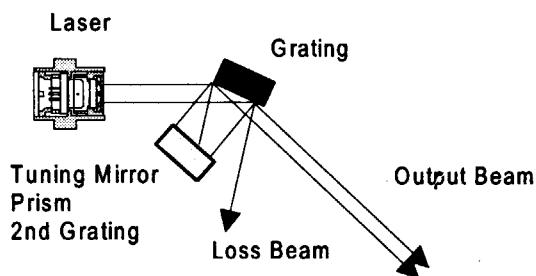
低いことなどの欠点も有している。このため、この共振器構造はより高いスペクトル純度が要求される2倍高調波結晶のシード光などの光源に利用されることが多い。この共振器で得られるレーザー光の波長幅は次式で与えられる。

$$\Delta = \frac{cd}{\pi mw\lambda} \cos \alpha \quad (2.7)$$

但し d:回折格子の格子間隔、 α :入射角、m:干渉次数、w:レーザービーム半径である。



(a)Littrow configuration ECDL



(b)Littman configuration ECDL

図2 2つの代表的な外部共振器構造

2.4 フィードフォワード電流補償

広い波長範囲でモードホップのない連続波長掃引を実現する1つの方法は、2.1節で述べた無反射コートLD素子を用いることである。しかし、こうした素子は希望の波長で必ずしも利用できるとは限らず、価格も高価である。もう1つの方法は、回折格子の角度や外部共振器長などを制御するピエゾ素子の印可電圧を変えて波長を掃引する際に、ピエゾ電圧に比例してレーザーダイオードの駆動電流も変化させ、モードホップを抑えながら波長を連続的に変化させる方法で、フィードフォワード法と呼ばれている。図3にその原理を示す。図3(a)は、ECDLの発振に関係する縦モードやゲイン曲線などの周波数関係を模式的に表したものである。最も広い曲線はレーザー媒質そのものの持つゲイン曲線である。その中で粗くECDLの発振波長を決めるのが、回折格子の1次回折曲線(この幅は(2.6)式で与えられる)である。さらにECDLでは、(1)レーザーチップの両劈開面で形成される素子本来の内部共振器、(2)出力窓とチップ後方端面間に形成される内部共振器、(3)回折格子とチップ後方端面間で構成される外部共振器、など

に定在する縦モードが存在する。(2)と(3)の共振器長は2mmと20mm程度であるので、モード間隔はそれぞれ70GHz、7GHz程度である。従ってECDLで実際に発振する縦モードは、2つのゲイン曲線とこれらの共振器モードが全て重なる部分に存在する縦モード（図の太線のモード）となる。回折格子のピエゾ電圧のみで波長を変化させると、外部共振器長が変わるためにECDLの縦モード周波数のみが移動し、別の縦モードが他のゲイン曲線と重なり、モードホップが起こる。そこで、図3(b)のように外部共振器モードの変化に内部共振器モードを同期させることで、同じ縦モード発振を維持し、波長を連続的に変化させるのが本方法の原理である。外部共振器モードの変化量と内部共振器モードの変化量を一致させるため、ピエゾ電圧でLD駆動電流を変化させる割合を最適化することが求められる。Ricci^[5]によれば、電流補償率を最適化することで連続掃引範囲を数10GHzまで拡大できることが報告されている。但し、本方法では、波長によってレーザー光強度が変化することや、レーザー素子近傍の局所的な熱平衡が崩れることにより、電流の増加、減少時の発振波長にヒステリシスが生じるなどの欠点もあるため、分光分析に必要な波長掃引幅や出力強度の安定性を考慮して、補償率を設定する必要がある。

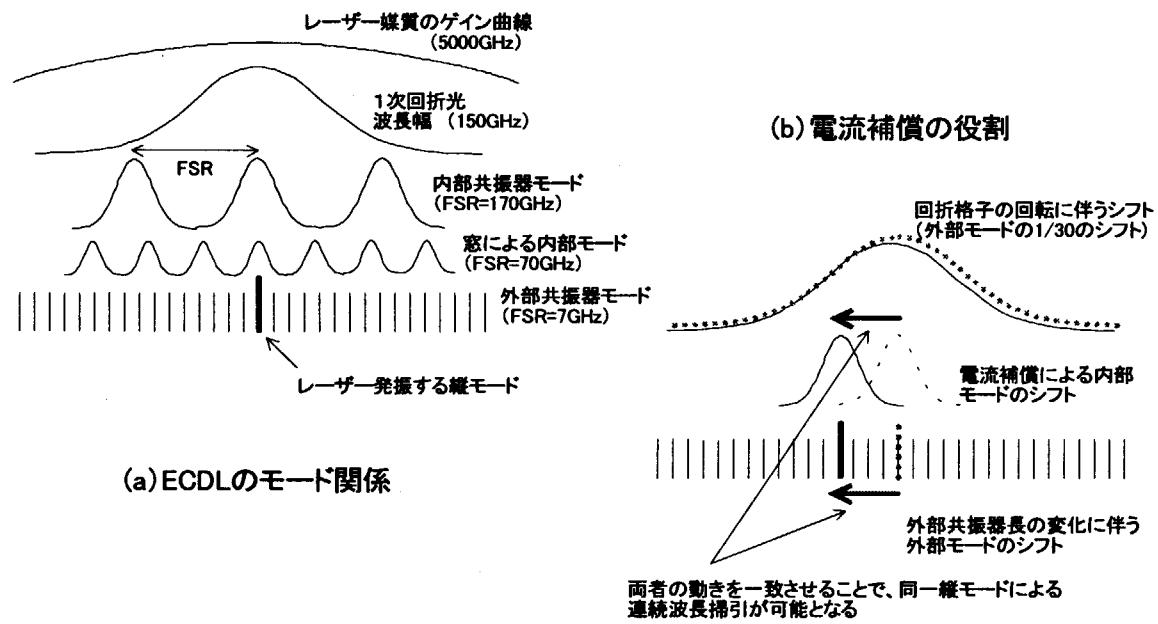


図3 フィードフォワード電流補償の原理

3 ECDL の設計および製作

3.1 設計した ECDL の構造と特徴

設計した ECDL の概略構造を図 4 に示す。レーザーヘッドの基本構造は Haensch らの Littrow 型共振器と同じで、回折格子ブロックとメインプレートに割を入れ、その隙間をファインピッチねじで変化させることで、共振器を調整する構造である。但し、この共振器は、素子に戻る 1 次回折光のビーム形状や位置が出力特性を大きく左右するので、レーザー素子はコリメーターレンズとともに 1 つのコリメータホルダーに収納し、素子、レンズ、回折格子の 3 次元的な相対位置、角度を精密に調整できる機構とした。具体的には、Haensch らの設計に比べて、次の点を改良した。

- (1) レンズホルダーを内筒と外筒に分けて、両者にファインピッチのねじを設け、レンズを保持する内筒を専用レンチで回転させることにより、焦点距離を精密に調整出来るようにした。
- (2) 9mmCAN や 5.6mmCAN 型素子を、3 点で保持する構造とした。1 力所には金属ボールをスプリングとネジを介して押す機構、2 力所にはファインピッチねじで直接押す機構を設け、素子の水平、垂直位置を精密に調整できるようにした。
- (3) 回折格子の回転により 0 次回折光の出射角度が変わらないよう、回折格子ブロックに出力ミラーを固定した。
- (4) 風の影響を防ぐため、ヘッド全体をカバーで覆った。

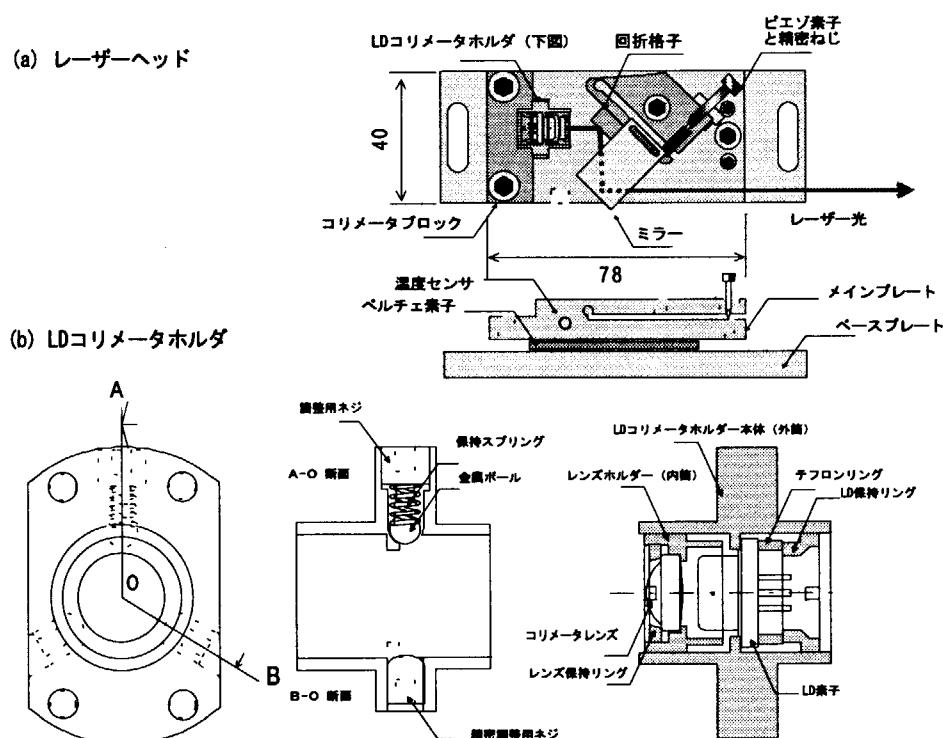


図4 ECDLの概略構造

3.2 ECDL制御用電子回路

図5に本ECDLのコントロール回路の模式図を示す。LD駆動電源は低ノイズである事が重要なので、LD専用の駆動回路と温度安定化回路を持つコントローラーボード(Thorlab社製 ITC102)に、設定値の表示回路、操作機構、安定化電源等を付加して製作した。電源は高周波のスイッチングノイズを避けるために、シリーズレギュレーター電源を用いた。この他、回折格子の角度を変えるピエゾ素子の電源には外部制御回路を持つピエゾコントローラー(Thorlab社製MDT-693, 最大電圧150V)を使用した。

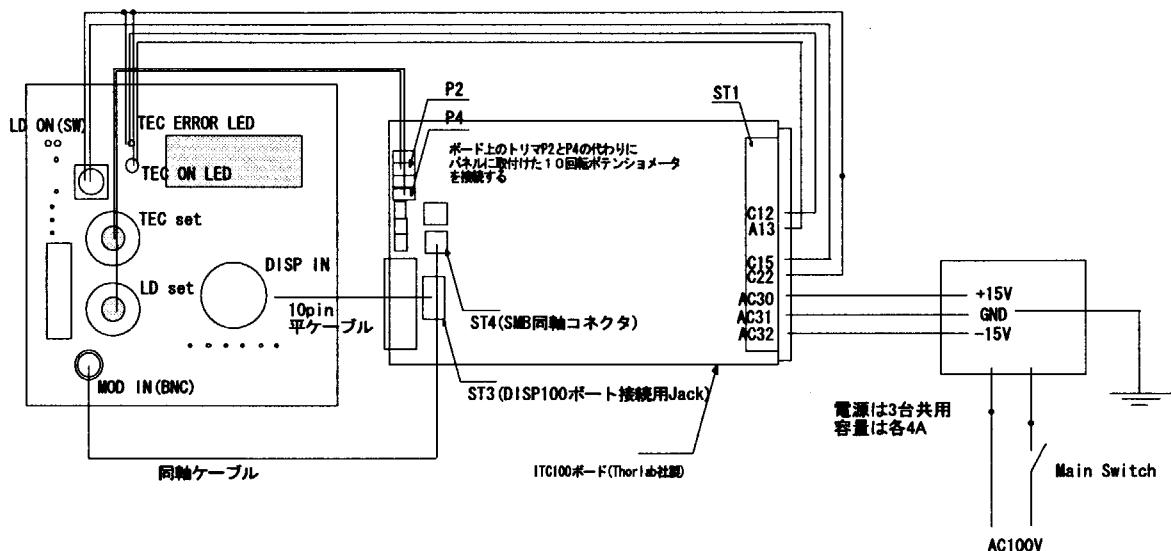


図5 ECDLコントローラーの配線

また第2章の電流補償制御のため、ピエゾ素子の制御電圧を反転増幅して、レーザーコントローラーの外部制御信号を作る簡単な回路を製作した(図6)。ピエゾコントローラーの出力を100:1に抵抗分割し、最大1.5Vを温度ドリフトの少ないFET型オペアンプ(μ PC813)で反転増幅(1倍)し、ポテンシオメータで $1 \sim 10^3$ 倍して出力させた。ITC102ボードのLD電流変調端子では、この入力に対して40mA/Vの割合でLD電流が変化する。このため、代表的な電流補償率：0.35倍(3.5目盛)でのLD電流変化量は $-0.14\text{mA}/\text{V}_{\text{piezo}}$ となる。

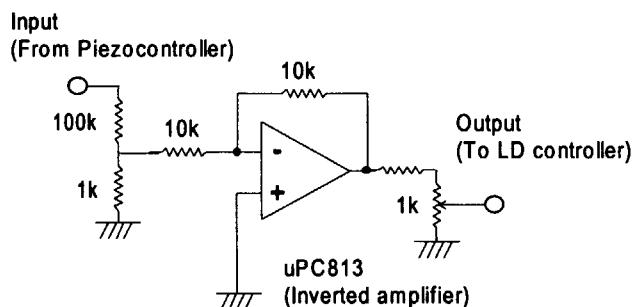


図6 電流補償回路

3.3 ECDL の組立と調整の詳細

半導体レーザーでは、一つの素子で発振する波長域が限られるため、元素の吸収波長に合わせて使用する素子を変える必要がある。本研究では設計したECDLの基本特性を調べるために、半導体材料や構造が異なる3つの素子、

- ①赤色LD： 東芝 TOLD9140, 20mW, 690nm, ダブルヘテロ構造、1992年製、
- ②赤外LD： 三洋 DL4140-001S, 20mW, 785nm, 量子井戸構造、2002年製、
- ③青紫LD： 日亜 NDHV310ACAE2, 30mW, 422nm, 量子井戸構造、2003年製、

を代表例として用いた。レーザーヘッドの組立と調整は以下の手順で行った。

- (1) メインプレートとベースプレートの間に、セラミックと金属を接着する熱伝導性接着剤(日本ヘルメックス社製ヘルメタイト TX-873B)を塗布してペルチェ素子(Marlow 社製 DT12-6)をはさみ、クランプした状態で、真空乾燥オーブン(Yamato DPF-31)に入れた。100度以上ではペルチェ素子内部のはんだが溶けて導通不良を起こすので、オーブン内温度を100度で一定に制御し、約600mmHgの真空中で3時間加熱して接着させた。
- (2) コリメーターブロック直下に温度安定化のための温度センサー(Analog Device 社製 AD590J)を取り付けた。接着には熱伝導性サーマルコンパウンド(Sunhayato SCH-20)を使用した。
- (3) 半導体レーザーからの光を無駄なく集光するため、Numeric Apertureが大きく表面が無反射コートされた広角ガラスレンズ(Geltech 製 NA 値 0.6)をコリメーターレンズとして使用し、ホルダーにレーザー素子とともに組み込んだ。ホルダーとコリメーターブロックを固定した後、レーザー素子をソケット(Thorlabs 社製 S8060)を介してコントローラーと接続した。静電気による素子の破損を防ぐため、作業は加湿器で湿度約40%に加湿したフード内で行い、ハンドストラップで静電気を取り除いた。半導体レーザーの出力ビームは梢円であり、その短軸方向(pn 半導体の接合面方向)に直線偏光している。一方、回折格子は溝方向に直線偏光した光の時に、回折効率が最も高くなる。そこで偏光が溝方向になるよう素子の角度を調整した。
- (4) レーザーヘッドの幾何学形状から、回折格子の適正角度(2θ)は60~100度の範囲であるため、1次回折角がこの範囲になるよう、波長域によって溝密度の異なる回折格子を用いた。具体的には青紫ECDLには3600本/mm(Edmund 社製 43778E)、赤色ECDLには1800本/mm(Edmund 社製 43775E)、赤外ECDLには1500本/mm(Zeiss 社製 金コート)の回折格子を用い、これらを回折格子ブロックに接着した。さらに、その角度調整プレートと角度調整用ファインピッチねじ(Thorlab 社製 MAS15)の間に、積層型ピエゾアクチュエーター素子(NEC Tokin 社製 AE0203D08、推奨入力100Vで $6.1 \pm 1.5 \mu\text{m}$ 、最大入力150Vで $9.1 \pm 1.5 \mu\text{m}$ の伸張)を挟み、ねじとピエゾ素子の両方で回折格子の角度を調整した。
- (5) 芯ケーブルと D-sub15 コネクタを介して、温度センサー、ペルチェ素子、ピエゾ素子をコントローラーに結線した。また静電気によるレーザー素子の破損を防ぐため、動作時以外は素子のアノード、

カソード端子を筐体に結線するスイッチをレーザーヘッドに設けた。

- (6)回折格子ブロックを外してレーザー素子を発振させ、コリメータホルダーの2つのファインピッチねじを用いて、レーザー素子とレンズ間の相対的な位置を調整した。また、治具を用いてレンズの焦点距離を調整した。数m先までの間で焦点を結んでいないこと、ビームパターンに歪みが無いこと、光がテーブルに対して水平に出力されていることを確認した。
- (7)回折格子ブロックを取り付け、1次回折光がレーザー素子に戻るよう回折格子の角度、煽りを2本のファインピッチネジで精密に調整した。2つの角度を調整すると、回折格子からの戻り光のフィードバックによる外部共振器発振が起り、出力が増大した。このフラッシングがより強く起こるよう、CCDカメラと画像処理器(Hamamatsu Photonics 社製 DVS-3000)で出力光の2次元強度分布を観測しながら2つの角度を調整した。フラッシングが識別しにくい場合には、回折格子からの戻り光がコリメータレンズに反射されて生じるスポットをニアフィールドの出力ビーム周辺で探し、そのスポットが出力ビームと同じ高さになるよう煽り方向を調整した。高さが一致するとスポットが消失し、同時にフラッシングが起った。高さが一致してもスポットが消えない場合は、その波長の戻り光が弱すぎるので、回折格子角度を調整してスポットの水平位置を出力ビームに近づけ、再び高さの調整を繰り返した。出力ビームより右側から接近させてスポットが消失する位置は、外部共振可能な最短波長に対応し、左側で消失する位置は最長波長に対応する。
- (8)調整が完了したECDLヘッドは、風による温度変化を防ぐために全体をカバーパネルで覆った。

3.4 ECDLの製作コスト

製作したECDL本体とコントローラ、各1台当たりの費用は、LD素子を除く合計が52万円(素子は数千円から20万円)となった。表2に内訳を示す。このことからこれまで精密分光光源として使われてきたArレーザー励起リング色素レーザー(約3千万円)に比べて、ECDLの低コスト性が明らかになった。

表2 ECDL製作費用(1台当たり)

項目	金額(千円)	内訳
レーザーヘッド部		
(1)筐体製作	88.0	
(2)光学、電子部品	68.0	レンズ、回折格子、ペルチェ素子、ピエゾ素子
コントローラ一部		
(1)コントロールボード	136.0	ITC102ボード、ディスプレイボード
(2)筐体製作	133.0	Euro規格ラック、シリーズ電源
(3)ピエゾ素子電源	90.0	MDT693電源

4 製作した ECDL の発振特性

製作したECDLを動作、制御するために必要となる基本的な発振特性の測定を行った。図7にECDLの発振特性の測定に用いた装置構成を示す。光強度の測定にはパイロ電気素子(Coherent社製 LM-1)、モード観測には走査型ファブリペロエタロン(Burleigh社製、FSR:150MHz, フィネス:200及びCVI製FSR:300MHz, フィネス:200)、絶対波長の測定にはフィゾー干渉型波長計(Burleigh社製 WA-1500, 波長分解能0.001nm)を使用した。またエタロン等からの戻り光の影響を除くため-30dB～-60dBのファラデーアイソレーター(Linos社製, OFR社製)を使用した。

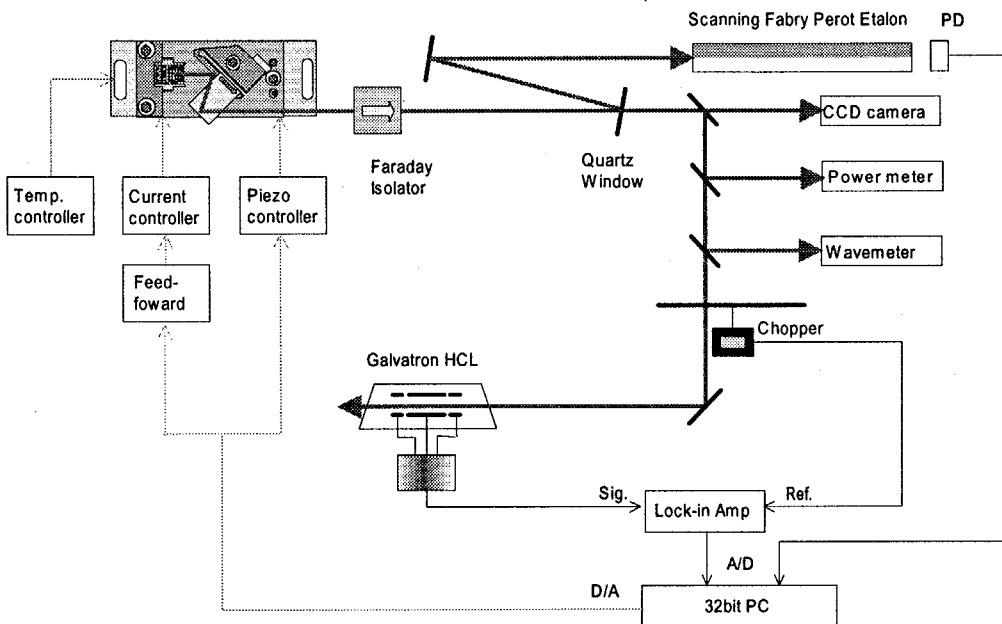


図7 ECDL発振特性測定装置

4.1 フリーランニング時のレーザー素子特性

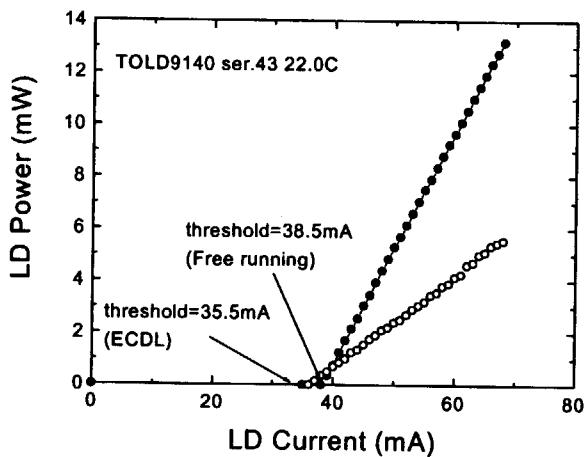
まず、外部共振器を付けないフリー動作状態でLD素子の発振特性を測定した。図8(a)-(c)にLDの注入電流と光強度の関係を示す(図は上から(a)-(c)の順、以下同様)。黒丸がフリー動作時、白丸が後述する外部共振器動作時である。黒丸の光強度はしきい値以上でほぼ直線的に増加し、許容最大電流で、最大出力の公称値にほぼ達した。図8(c)では温度を30°Cから50°Cに上げた場合の青紫LDの直線性を比較した。温度を上げると出力は約1%/°Cの割合で低下し、閾値が高くなるが、直線の傾きはあまり変化しないことがわかった。このような、温度上昇による出力の低下は他のLD素子でも同じように観測された。

注入電流を変化させると、光出力だけでなく発振波長も変化する。その関係は、図9のように、電流を増すとモードホップを伴いながら、段階的に長波長に変化する事がわかった。一つの縦

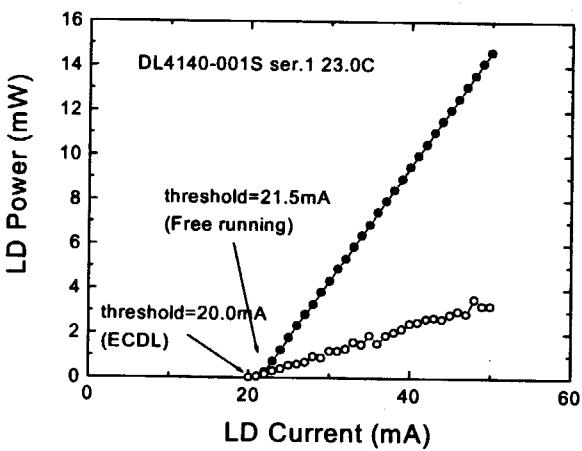
モードの波長は+4.2～+4.7GHz/mA(赤色、赤外)で変化し、約120～330GHzの内部モードでモードホップが起こった。ただし、青紫LDだけは、縦モード毎に傾き(-10～+10GHz/mA)が異なり、短波長に変化する縦モードや、波長が変化しない縦モードもあることがわかった。また、赤外LDや青紫LDが次々に安定な単一縦モードへ移るのに対し、赤色LDは広い範囲で単一縦モード発振の起らない領域が存在した。

次に発振波長と温度の関係を調べた。温度を変える場合、レーザー素子部分と温度センサーが離れているため、素子が平衡に達するのに4～5分を要した。そこで波長の測定は温度設定値を変えるごとに約5分間放置して行った。図10(a)に赤色LDの発振波長と温度の関係を示す。同一縦モードの波長は+0.042nm/°C(+26GHz/°C)の傾きで変化した。また、モードホップの間隔には0.53nm(330GHz)と0.065nm(40GHz)の2通りがあり、第2章で考察したように、前者はレーザーチップの内部モード、後者は素子のガラス窓とレーザチップの後方劈開面で形成される内部モードによるモードホップであることがわかった。この場合も、22～25°Cの範囲のように、発振が不安定で単一縦モード発振が起こらない領域が存在した。一方、図10(b)に示す赤外LDの温度特性では、波長変化の傾きは+0.053nm/°C(+33GHz/°C)で、モード間隔は0.26nm(160GHz)であった。赤外LDは温度変化特性でも、単一縦モード発振の起こらない温度領域は無かった。

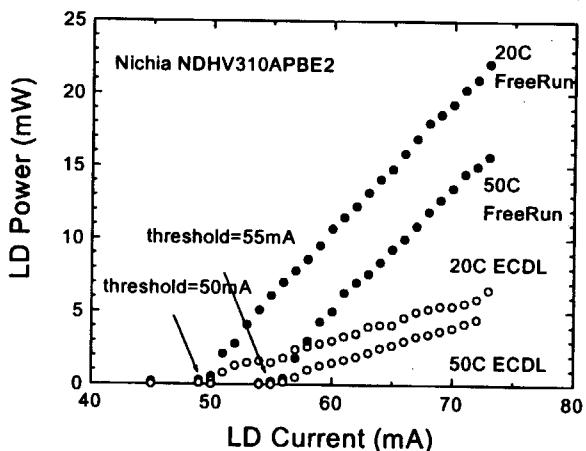
この様な単一縦モード発振の違いは、赤色LDの内部共振器のカップリングが弱い(半導体結晶の壁開面の反射率が低い)ことを意味していると考えられ、逆に、外部共振器の光フィードバックは起こりやすいものと考えられる。



(a)



(b)



(c)

図8 注入電流と光強度の関係

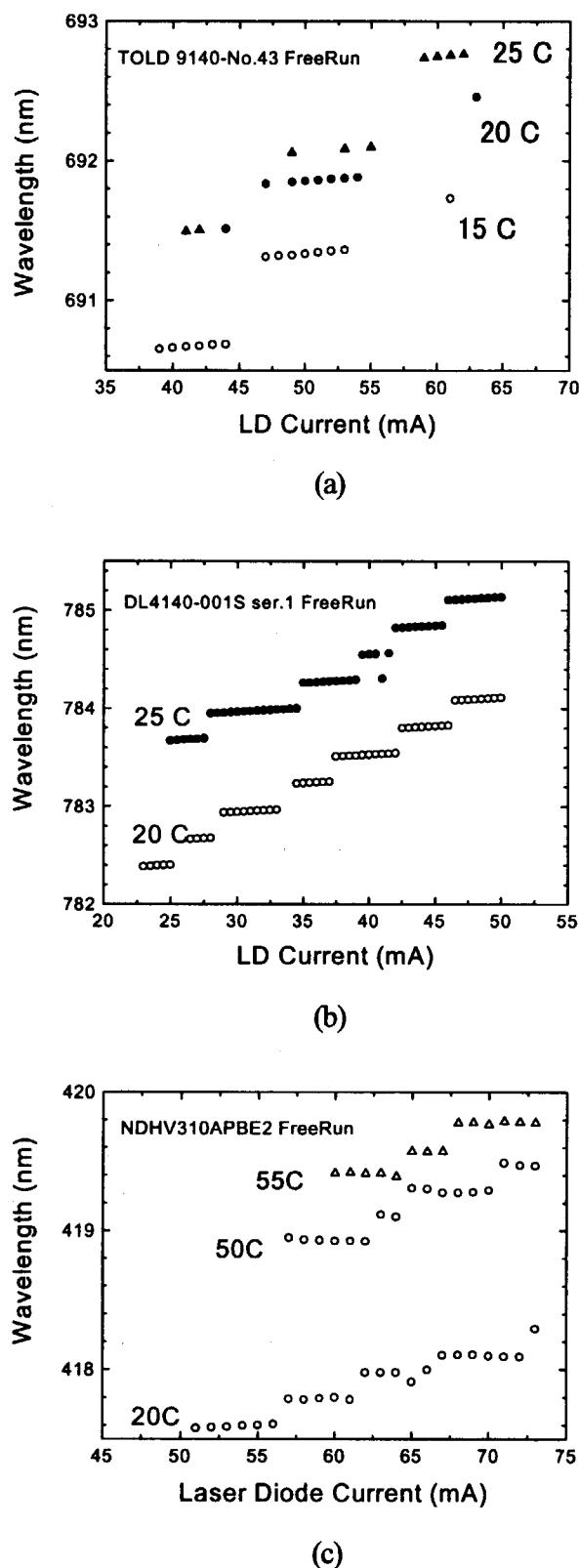


図9 注入電流と発振波長の関係（フリー動作時）

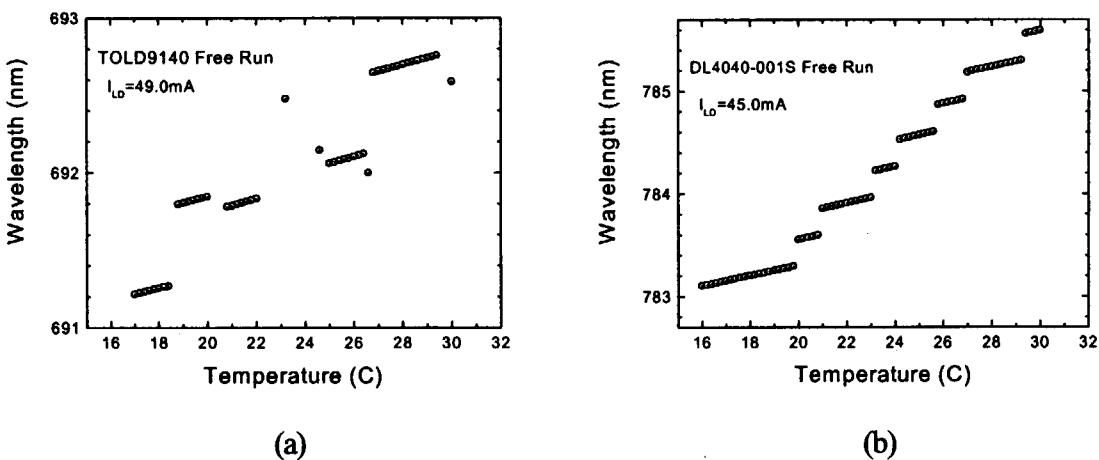
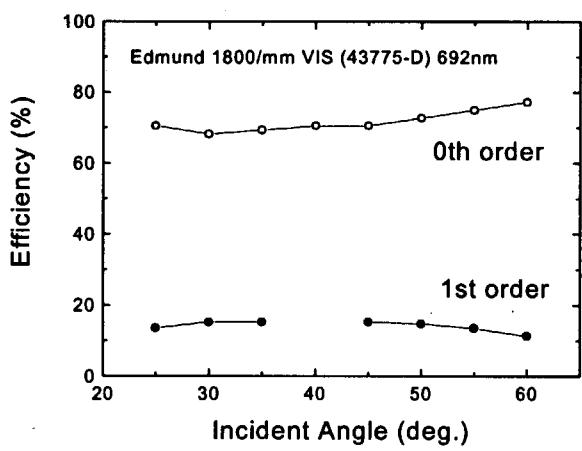


図10 温度と発振波長の関係（フリー動作時）

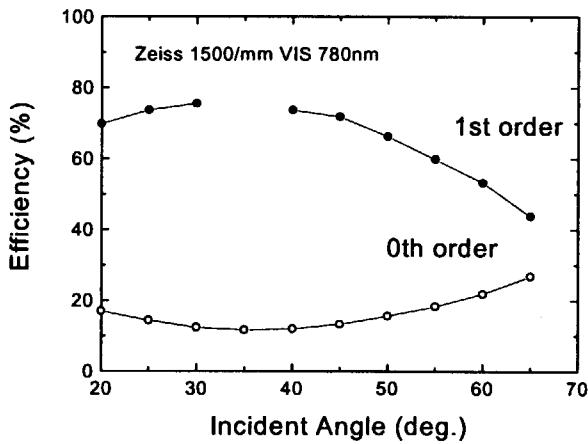
4.2 外部共振時の発振特性

LD素子に外部共振器を取り付けて一次回折光を戻すと、レーザーの発振閾値が下がることに伴って、閾値付近で急激な出力の増加（フラッシング）が観測される。ECDLの光強度の電流依存性をフリー動作の場合と同様に図8(a)-(c)に白丸で示す。青紫、赤色、赤外の各LDとも閾値は10%程度下がり、傾きも半分以下になった。この傾きは主に回折格子の回折効率や、波長によって決まる。ECDLで強いフラッシングが起こるように調整するのは、この閾値低下が大きいほど回折格子からの光フィードバックが強いためである。通常、閾値の低下は10%程度まで、その状態では外部共振器発振が安定した。ECDL時の直線のばらつきが大きいのは、外部共振器発振のモードホップが起こるためである。フリー動作時は内部モードの変化に伴う強度変化は小さいが、ECDLでは同じ外部モードが維持されている間は強度変化が小さく、モードホップすると強度が大きく変わるために階段状の変化となると考えられる。

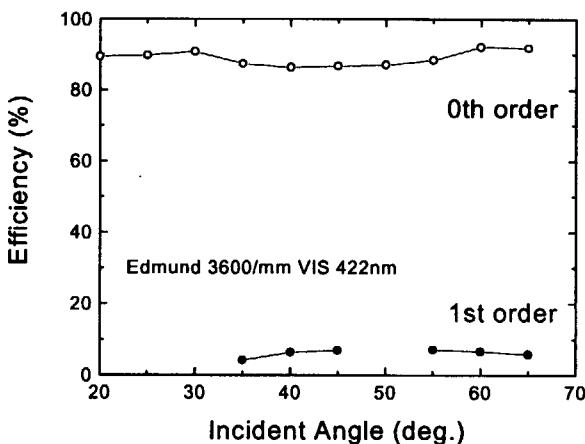
図11(a)-(c)に各LD用回折格子の使用波長付近における0次、1次回折効率の測定結果を示す。赤外LD用回折格子の回折効率が高いのは、赤外での反射率の高い近い金コーティングのためである。図よりLitrow角での1次回折率はそれぞれ5%～70%である。Bhatia²⁾らは回折効率の異なる3つの回折格子を用いて、回折効率の大きさとECDLの波長安定性の関係を調べ、5%程度では発振が安定せず、10%では安定な発振波長範囲が狭く、40%だと広い範囲で安定になることを報告している。しかし、今回の試験では、青紫の場合、効率が5%程度でも安定な単一縦モード発振が確認された。一方、赤色LD用回折格子を780nmのECDLに使用すると、10%程度の1次回折効率でも、モードホップや多モード発振が頻繁に起こり、発振が不安定になることがわかった。



(a)

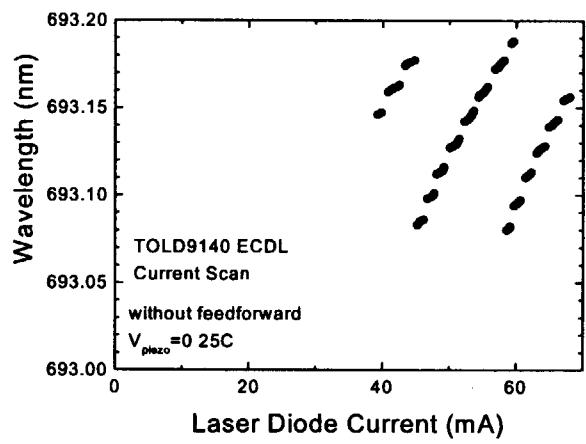


(b)

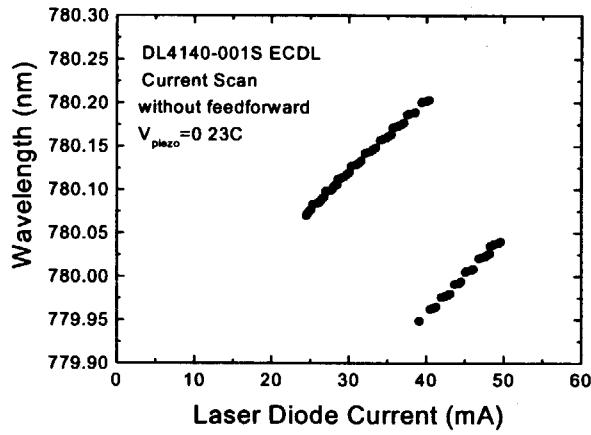


(c)

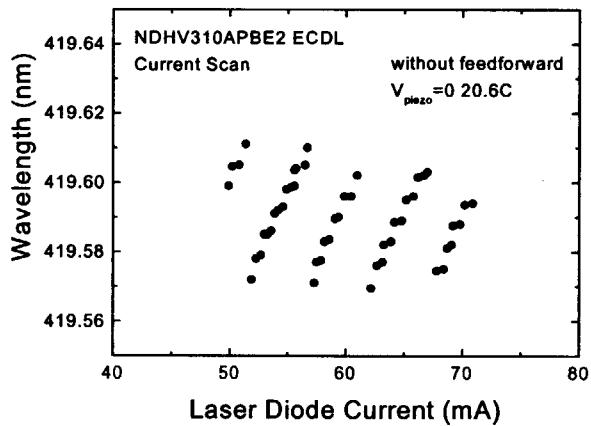
図 1 1 回折格子の回折効率



(a)



(b)



(c)

図 1 2 注入電流と発振波長の関係 (ECDL動作時)

図12 (a)–(c)にECDLの注入電流と発振波長の関係をフリー動作の場合と同様に示す。発振する波長範囲は図9に比べて明らかに狭く70–120GHz程度であることが分かった。これは2.2節で述べた回折効率曲線の波長幅が $\Delta\nu_G=140\text{GHz}$ 程度のためと考えられる。電流を増加させると、発振波長は5~10回程度の小さなモードホップを繰り返しながら長波長側へシフトし、上限に達すると、最短波長へジャンプして再び増加を繰り返している。この小さなモードホップは2.4節で述べた共振器長20mmの外部共振器のFSRに対応している。変化の傾きは一様ではなく、同一縦モードの範囲では低電流側の波長変化が小さく、電流が大きくなるほど大きくなる傾向がみられた。

また、図13(a)–(c)に測定したピエゾ電圧に対する発振波長の変化を示す。各LDとも、外部共振器長の変化により単一縦モードを維持しながら最大約6GHzの範囲で波長が連続的に変化する。同一縦モードのピエゾ電圧に対する波長変化の傾きを求めるとき、 $-0.00067\text{nm}/V_{\text{piezo}}$ (赤色、青紫)、 $-0.0012\sim-0.0018\text{nm}/V_{\text{piezo}}$ (赤外)あることが分かった。赤外LDの場合、大きな波長変化を伴うモードホップが起こる領域(40~50V)で外部共振器発振が途絶え、素子のフリー動作モードが現れる。これはフリー動作特性で見たようにこのLDの内部モードのカップリングが強いこと、発振波長780nmが素子の中心波長784nmから離れていることによるものと考えられる。以上の様なピエゾ電圧に対する波長依存性は、ECDLの波長を希望の共鳴波長に同調させる場合に不可欠な特性となる。

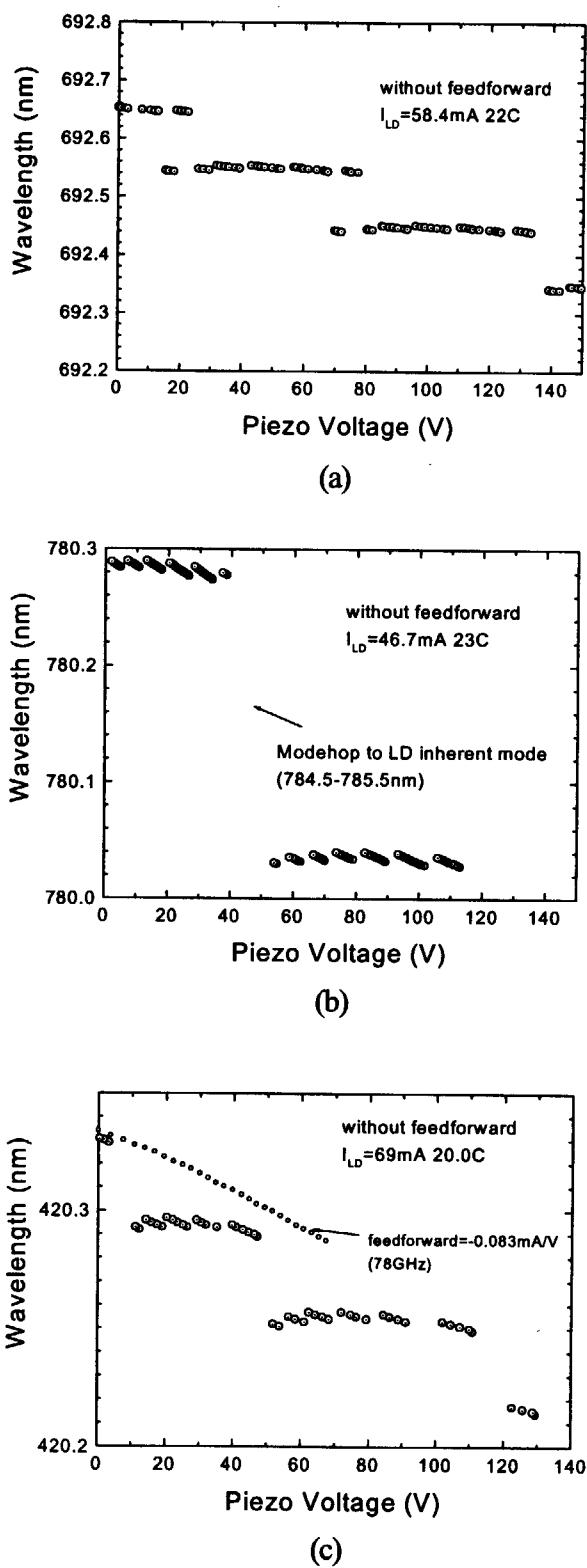


図13 ピエゾ電圧と発振波長の関係（電流補償なし）

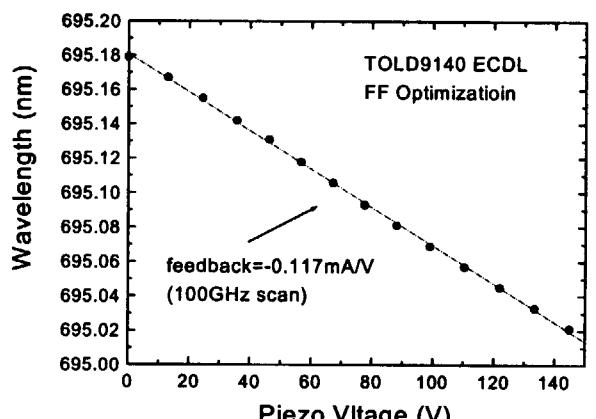
4.3 フィードフォワード補償率の最適化

前節で述べたようなフィードフォワードなしの波長変化に現れるモードホップは、共存する内部、外部モードの重なりが、外部モードの掃引によって外れ、代わりに別の外部モードが成長することにより起こる。しかし、分光分析へのレーザーの応用では、1つの縦モードを維持しながら連続的に波長を変えることが重要である。そこで、製作したフィードフォワード回路を利用し、ピエゾ電圧でレーザー駆動電流を制御することにより、外部モードの周波数変化に合わせて内部モードを変化させる試験を行った。

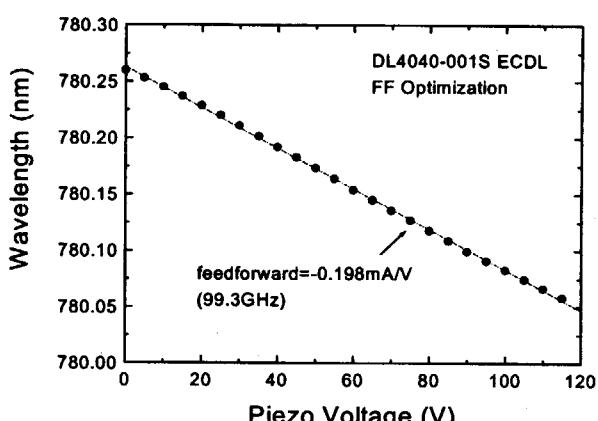
内部モードの周波数変化と駆動電流の関係はすでにフリーラン特性で測定しており、図9(a) (b)より $+0.007\text{nm}/\text{mA}$ (赤色)～ $+0.008\text{nm}/\text{mA}$ (赤外)である。よって、ピエゾ電圧によるLD電流補償率を $-0.00067/0.007 = -0.1\text{mA}/V_{\text{piezo}}$ (赤色)、 $-0.15 \sim -0.23\text{mA}/V_{\text{piezo}}$ (赤外)とすれば、両者の動きを合わせることができる。実際には、LD電流の減少に伴い、レーザーチップの発熱量、局所熱平衡温度が低下する効果や、ピエゾ素子の伸びが印可電圧に対して比例しないこと、縦モードによって電流一波長特性がわずかに異なること等のため、最適補償率は計算値と一致しないが、計算値を初期値として補償率を変化させ、波長掃引範囲を比べる事で容易に最適値を探すことができる。青色LDの調整も同様であるが、前述したように電流一波長特性が縦モード毎に大きく異なるため、動作電流や動作温度を変えて縦モードを変更する場合は、その都度最適化する必要があることがわかった。

図14(a)-(c)に各LDで、連続波長掃引範囲が最も広かった電流補償率による発振波長とピエゾ電圧の関係を示す。いずれのLDでも約100GHzのモードホップ無し連続波長掃引が可能である事を確認した。また、ECDL動作時にはフリー動作時よりも発振可能な波長範囲が2～3nm広がることがわかった。

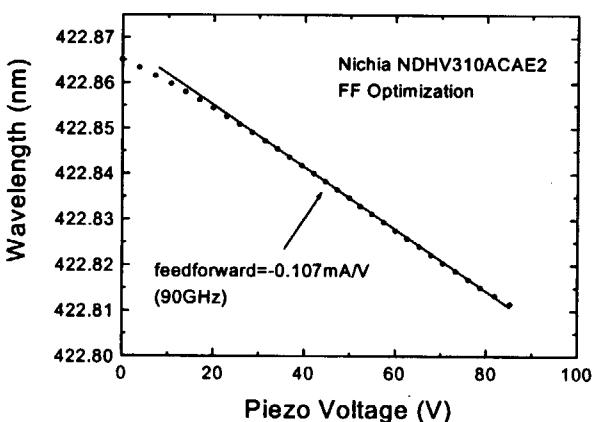
最適な電流補償状態で、波長掃引範囲を制限するのは回折格子の回折効率曲線の拡がり $\Delta v_G (=140\text{GHz})$ である。図3(b)に示したように、ピエゾ電圧を増加させ、共振器長を短くし、短波長へスキャンすると、レーザー光の回折格子への入射角が小さくなり、レーザー素子に戻る光の波長も短くなるので、回折効率曲線も良い方向へ変化する。しかし変化率が小さく、外部共振器の共振器長の変化速度に追従できないため、最後は波長が回折効率曲線から外れてモードホップする。実際、本ECDLのピエゾ素子は $100V_{\text{piezo}}$ に対して $6\mu\text{m}$ ほど伸びる。回折格子ブロックの支点からピエゾ素子までの長さは約30mmなので、回転角度は $2 \times 10^{-4}\text{rad}$ 程度、よって式(2.5)より回折波長は 0.003nm だけ短波長へずれる。しかし外部共振モードの波長は同じ $100V_{\text{piezo}}$ で $0.06\text{nm} \sim 0.1\text{nm}$ 程度シフト(図14(a)-(c))するため、回折効率曲線が追従できないことが分かる。従って、より広い波長掃引範囲が必要な場合は、ピエゾ電圧によって回折格子の角度を制御することが必要と思われる。



(a)



(b)



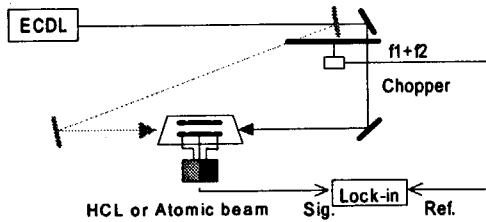
(c)

図14 ピエゾ電圧と発振波長の関係（電流補償最適化後）

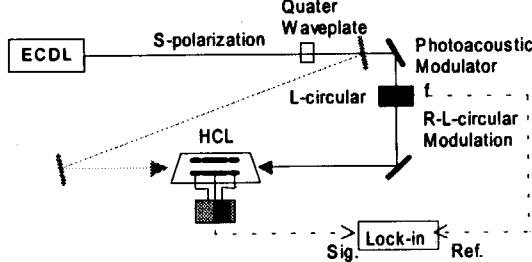
5 製作した ECDL による分光測定

本研究により試作したECDLの発振幅を評価し、分光分析用光源としての性能を確かめるために、赤外、赤色、青紫の各ECDLを用いて、蛍光、吸収、ガルバノ信号のドップラーフリー分光を行った。測定にはシースルー型ホロカソードランプ、ガス封入ガラスセル、原子ビームを原子源に用い、レーザー光は光チョッパ(Stanford Research社製 SRS540)や偏光変調器(Hinds社製 PEM90)などで変調して、変調に同期する信号をロックインアンプ(NF回路ブロック社製 LI-570A)で位相敏感検波した。図15(a)-(d)に実験装置の概要を示す。

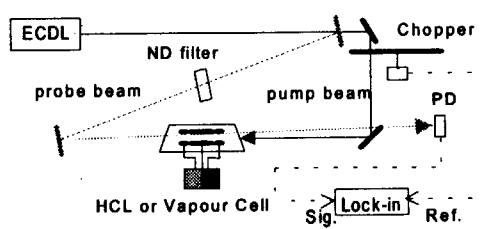
(a) IMOSS and IMLIF



(b) POLINEX-OGS



(c) Saturated ABS



(d) LIF using atomic beam

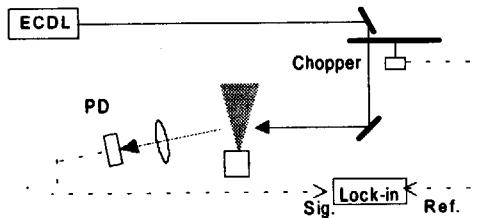


図15 各ドップラーフリー分光の装置構成

5.1 赤色 ECDL を用いたドップラーフリーガルバノ分光

赤色ECDLは、692.9468nm(air)に強い共鳴線($gf=0.684$)があるネオンの光ガルバノ分光を行った。光ガルバノ分光は、レーザー波長がランプのホロカソード部にあるネオン原子の吸収波長に一致した時に、放電に関与していたネオン原子の一部がより高い励起状態へ遷移して放電抵抗が減少する性質を利用する分光法である²²⁾。観測した遷移は放電による占有率が大きいネオンの準安定準位を始状態とする遷移($3s(1/2)_{J=1}: 135890.7\text{cm}^{-1} \rightarrow 3p(3/2)_{J=2}: 150317.8\text{cm}^{-1}$)である。図16(a)に測定した光ガルバノスペクトルを示す。横軸の相対周波数は同時に測定したエタロンの波形から算出した。存在比90%の²⁰Neのほか、2.1GHz高周波数側に10%の²²Neピークによる肩が観測された。ピークの半値幅は約2.1GHzで、主にホロカソードランプ中のネオン原子のドップラー拡がりによるものと考えられる。

次に、レーザーの時間平均発振幅や、ネオンの同位体シフトを測定するため、図15(a),(b)のようにハーフミラーでレーザービームを2つに分けてホロカソードランプに対向して入射させ、相互変調分光法(Inter-Modulated OGS: IMOOGS)と偏光相互変調分光法(Polarization Inter-modulated Excitation: POLINEX)の2つのドップラーフリー分光法を用いてガルバノ信号を測定した。IMOOGS法は2つのビームの変調周波数を変え、非線形効果によって信号に現れる和周波、差周波の変調成分を検出する方法である。測定結果を図16(b)に示す。²²Neのピークが現れたが、主ピークの半値幅は約1.5GHzまでしか狭まらないことがわかった。これは、ランプ内部で速度変化を伴う衝突が頻繁に起こるためと考えられる。

一方、POLINEX法は偏光変調器を用いて、一方のビームの垂直直線偏光を水平直線偏光まで交流変調させ、変調させないビームの透過光に現れる水平直線偏光成分を検出する方法である。この方法では、速度変化を伴う衝突を起した原子は、原子の整列、配向状態が崩れて信号に寄与しなくなるため、IMOOGS法より幅の狭いピークが得られた(図16(c))。測定したネオンの遷移の同位体シフトは $2180 \pm 80\text{MHz}$ と求められ、文献値 $2192 \pm 5\text{MHz}$ ²³⁾とほぼ一致することがわかった。また、POLINEX法のピークの半値幅は50MHzだった。

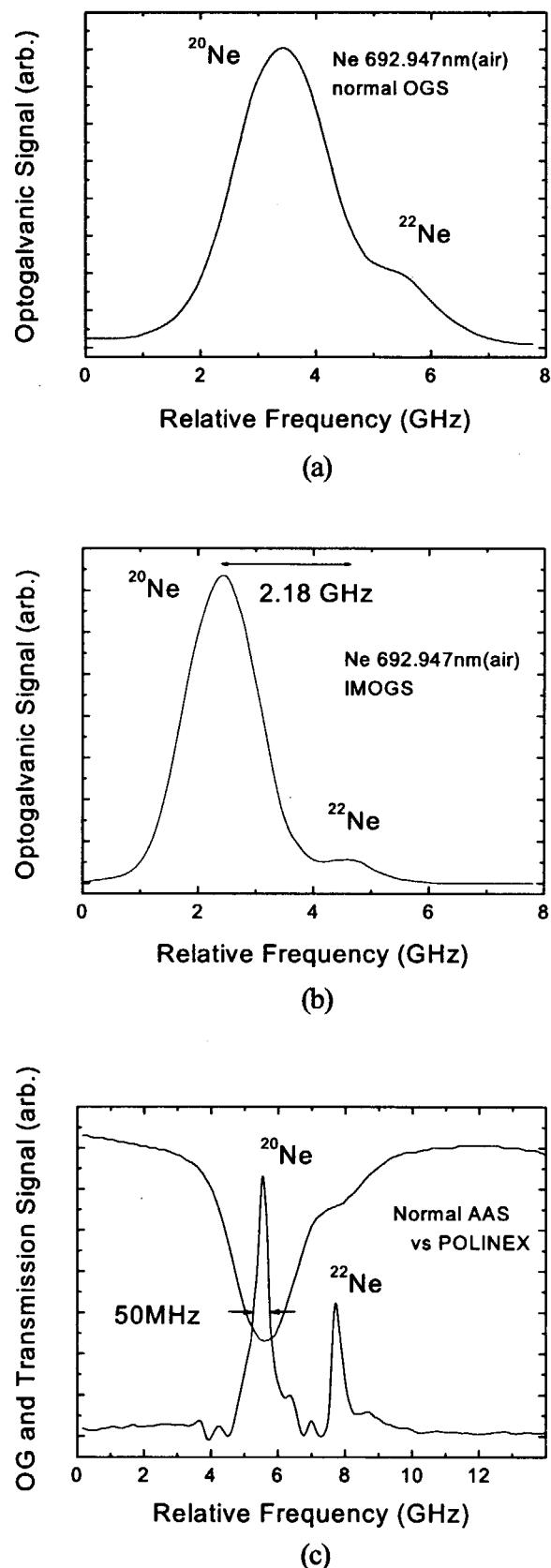


図16 ネオンの光ガルバノスペクトル

5.2 赤外ECDLを用いたドップラーフリー飽和吸収分光

赤外ECDLでは、780.0227nm(air)に強い吸収線(D_2 線: $gf=0.67$)のあるルビジウムの飽和吸収分光(図15(c))を行った。ECDLの光は石英板で弱い反射ビーム(プローブ光)と、強い透過ビーム(ポンプ光)に分け、ルビジウム光吸収セル(Hamamatsu HKS-RB19-80/90)に対向して入射した。ポンプ光だけを光チョッパで変調し、プローブ光の透過光をフォトダイオードで検出した。この信号に含まれる変調に同期する成分だけを位相敏感検波した。結果を図17(a)に示す。ルビジウムの2つの天然同位体 ^{85}Rb (存在比:72.165%)、 ^{87}Rb (存在比:27.835%)に起因する多数のドップラーフリー吸収線が観測された。これは吸収ピークに現れるホールバーニング構造だけを抽出したスペクトルである。吸収線は、2つの同位体の基底準位がそれぞれ2つの超微細構造準位に分裂しているため、4つの群に分かれている(図18)。上準位はそれぞれ4つの超微細構造準位に小さく分裂しており、これが各群の中の細いピークに対応している。最も低周波数側の $^{87}\text{Rb}(F=2 \rightarrow F')$ の群の詳細なスペクトルと、準位図から同定した各ピークの遷移を図17(b)に示す。飽和吸収分光で現れるピークは、原子源の中でランダムに飛び回る原子のうち、レーザーの光軸方向の速度成分が無い原子によって生じる。しかし、速度を持つ原子でも、ドップラー効果のために、たまたま右向き、左向きに進むレーザー光に対して原子が感じる周波数が、2つの共鳴周波数に一致する速度となる原子は、2つの共鳴周波数のちょうど中間に吸収ピークを作る。図ではこのような飽和吸収スペクトルに特有のクロスオーバーピークをCOで表し、関与する2つの超微細構造準位を示した。

図の同定に基づきルビジウムの上準位の超微細構造間隔を求めるとき、 $F=1-F=2$ 間が $160 \pm 5\text{MHz}$ 、 $F=2-F=3$ 間が $265 \pm 5\text{MHz}$ となり、文献値 157MHz 、 267MHz と一致した。また、各ピークの半値幅は約 20MHz と求められた。上準位の寿命($\tau = 26.5\text{nsec}$)からこの遷移の自然幅($\tau^{-1}/2\pi$)は 6MHz 程度であり、観測した幅はこれより大きかった。光強度を変えて測定した幅の変化から、飽和拡がりの影響は小さいと考えられ、この幅が本レーザーの発振幅を示すものと考えられる。

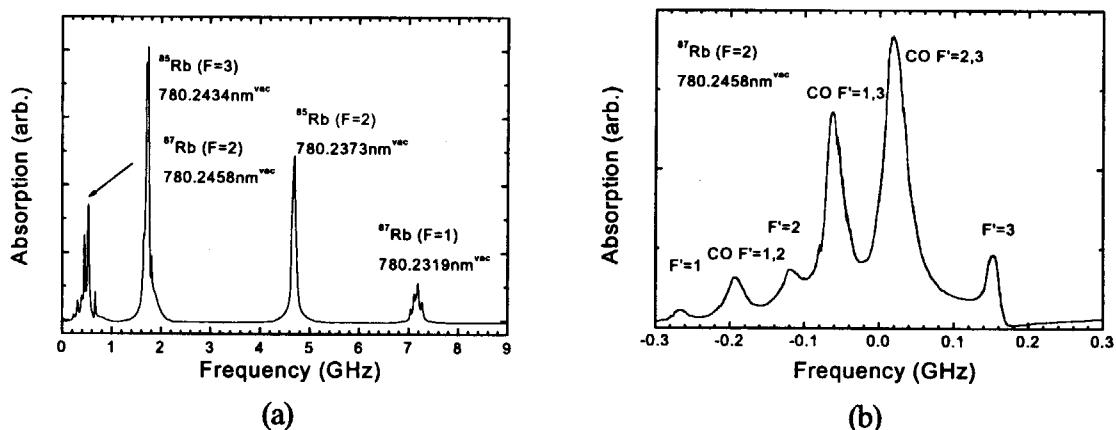


図17 ルビジウムの780nm共鳴線の飽和吸収スペクトル

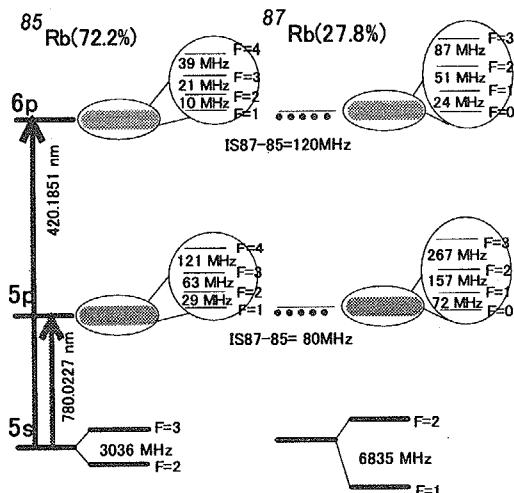
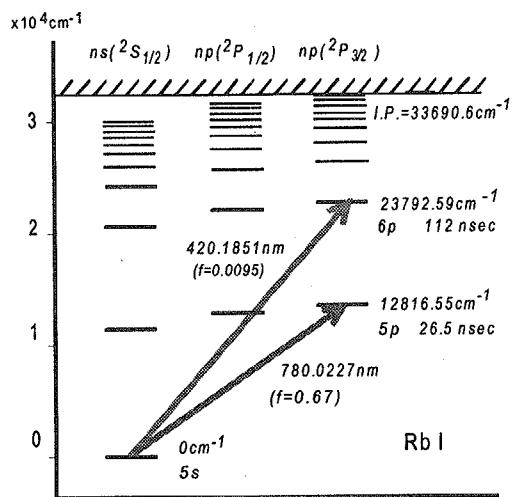


図18 ルビジウム原子のエネルギー準位図

5.3 青紫 ECDL を用いたドップラーフリー蛍光分光、飽和吸収分光

青紫ECDLでは、まず、420.1851nm(air)に吸収線のあるルビジウムの飽和吸収分光を行った。装置の配置は赤外ECDLの場合と同様であるが、420nmの遷移の振動子強度が780nmの50分の1の $gf=9.5 \times 10^{-3}$ なので、吸収量を増やすために、ルビジウムセルをヒーターで約70度まで加熱した。測定結果を図19(a)に示す。D₂線の場合と同様、基底準位の超微細構造と2つの同位体により、吸収線は4つの群に分かれている。最も低周波数の群の詳細なスペクトルと、各ピークの同定結果を図19(b)に示す。780nmの遷移に比べて超微細構造の分裂幅は小さく、各ピークが重なっている事がわかる。図の同定に基づきルビジウムの上準位の超微細構造間隔を求めるると、F=1-F=2間が 52 ± 10 MHz、F=2-F=3間が 97 ± 10 MHzとなり、文献値51MHz、87MHzと一致した。また、ピークの半値幅は約20MHzであり、この遷移の自然幅(1.4MHz)や予想される飽和広がりに比べて大きいことから、これがECDLの発振幅に対応するものと考えられる。

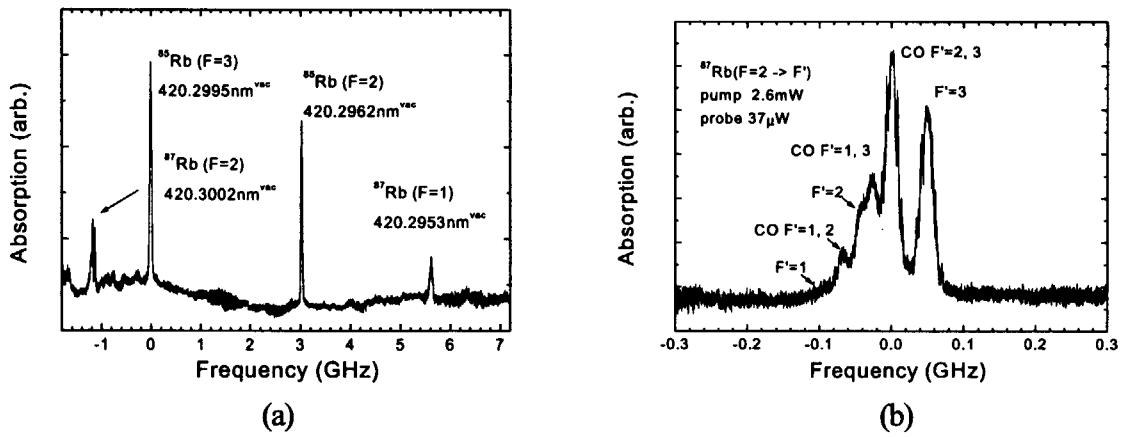


図19 ルビジウムの420nm共鳴線の飽和吸収スペクトル

青紫ECDLは、カルシウムの3段階共鳴イオン化質量分析の第1励起遷移用光源として用いる事から、カルシウムのホロカソードランプおよび真空容器内で発生させたカルシウム原子ビームを使った分光測定も合わせて行った。図20(a)は図15(c)のように、ホロカソードランプ内でスパッタされたカルシウム原子を用いて測定した飽和吸収スペクトルである。一方、図20(b)は図15(a)と同様の配置で、ランプの代わりに原子ビームを用い、発生する蛍光信号に含まれる和周波の変調成分を検出することで測定した相互変調蛍光スペクトル(Inter-modulated laser induced fluorescence: IMLIF)である。また原子ビームはそれ自体レーザー照射方向の速度拡がりが小さい事から、特別なドップラーフリー一分光手法を用いない蛍光スペクトルも合わせて測定した(図20(c))。ホロカソードランプでは放電による衝突がルビジウムガスセルに比べて支配的なため、ドップラーフリー吸収線に、ドップラー拡がりのある吸収線が重なって現れている。このため、存在比の小さい同位体のピークは ^{40}Ca のドップラーフリー吸収線に隠れている。原子ビームによる相互変調スペクトルも感度が低く、 ^{40}Ca 以外のピークはノイズレベル程度である。但し、 ^{40}Ca ピークの半値幅は相互変調スペクトルが最も狭く40MHzであった。上準位の寿命(4.6nsec)からこの遷移の自然幅は35MHz程度と考えられ、観測した幅はこれよりわずかに大きかった。光強度を変えても幅の変化は認められないことから、飽和拡がりの影響は小さいと考えられる。従ってこの差(約20MHz)がレーザーの発振幅を示していると考えられる。

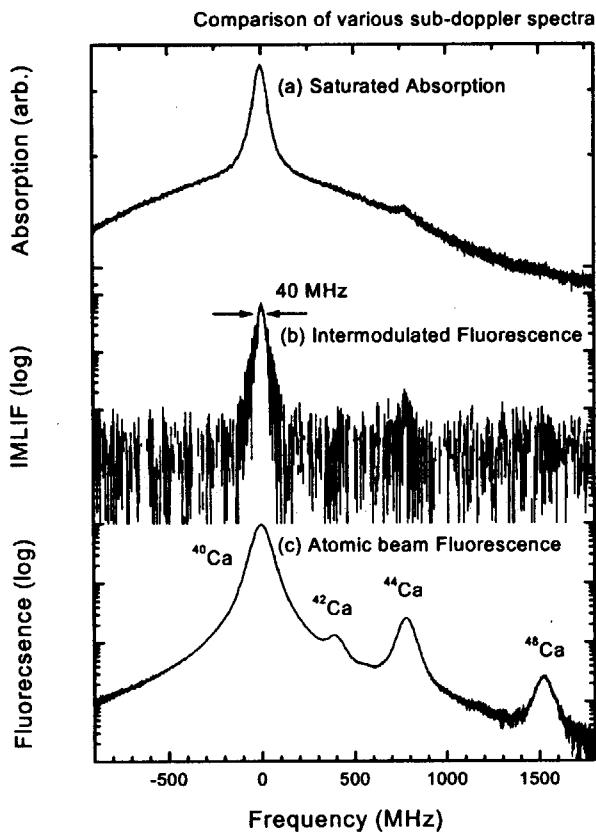


図20 カルシウムの422nm共鳴線の各スペクトル

5.4 製作したECDLの性能評価と今後の展望

ドップラーフリー分光で観測された共鳴線の線幅は、赤色LDで50MHz、赤外、青紫LDでは20MHzであった。これらは各遷移の上準位の自然幅に比べて十分広いことから、自然幅の影響は小さいと考えられる。赤色LDの幅が広いのは、信号が小さく、レーザー強度を強くしたためと考えられる。これを確かめるため、赤色、赤外ECDLについては、FSR:150MHz、フィネス:200（分解能750kHz）のエタロン干渉計を用いてフリンジの線幅を観測した。その結果、どちらのLDでも線幅の瞬間値は6~8MHz、積算時間1秒の平均幅は15MHz程度であることがわかった（図21）。従って、本研究で制作したECDLの発振幅はいずれのLDでも20MHz程度と考えられる。また、観測した同位体シフトや超微細構造分裂幅はいずれの遷移でも文献値と誤差範囲で一致しており、このことから本ECDLは分光分析用光源として十分な性能を有すると考えられる。

本研究により、分光分析に利用できるECDL光源を開発し、その動作に必要となる発振特性データを測定した。今後のECDLの開発課題としては、多段階共鳴電離分析用光源としての特性の向上、特に、長時間の波長安定性の向上が重要と考えられる。現在の波長変動量は1GHz/h程度であり、こうしたドリフトを抑えるためには、能動的な波長安定化機構が不可欠である。

ECDLの発振波長を原子共鳴線に固定する方法としては、ゼーマン効果を利用する方法など様々な方法が考案されており、最適な波長安定化法を開発する必要がある。また同位体比測定では、波長を安定化したまま広い範囲で掃引する手法が不可欠であり、干渉縞を利用して、原子線固定レーザーとの周波数差を固定したレーザーを開発する必要がある。さらに、分析用光源としての同位体選択性や検出感度の向上を図る段階では、発振幅の狭帯化やモードホップノイズ低減化も重要と考えられ、波長狭帯化システムの構築や、LD素子の無反射コーティング法の開発も必要になると思われる。

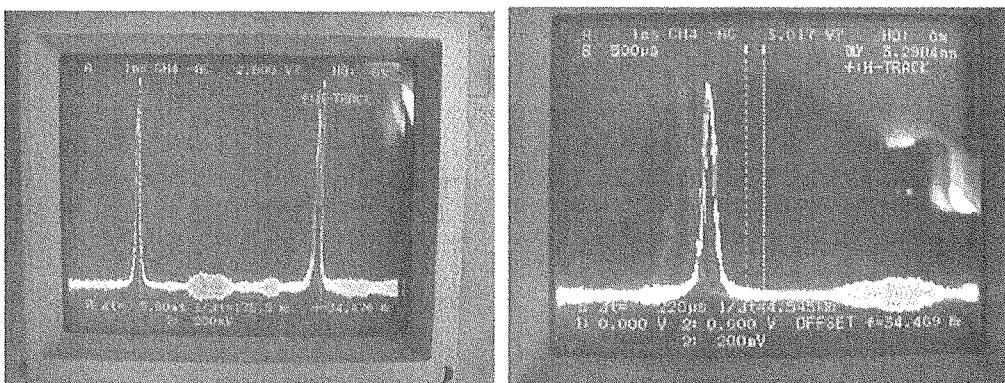


図21 ファブリペロ干渉計によるフリンジと発振幅

左の写真によりフリンジ間隔 5.6ms が FSR=150MHz に対応することがわかる。右の写真により縦モードの幅は 0.22ms なので、この ECDL の発振幅は 5.9MHz(瞬間値)となる。

6 結論

本研究により、LD素子とレンズ、回折格子の精密位置調整が可能なLittrow型外部共振器半導体レーザーを設計、製作した。製作したECDLに赤外、赤色、青紫の各LD素子を組み込み、発振波長や光出力などの動作電流や動作温度に対する変化を測定した。これらのデータを基に、回折格子による光フィードバック量やフィードフォワードの電流補償率などを調整して、安定な単一縦モード発振を得る方法を確立した。これにより、全てのLD素子で約100GHzの広い範囲でモードホップのない連続波長掃引を実現した。また、製作したECDLを用いて様々なドップラーフリー分光を行い、観測された吸収線の幅から、ECDLの発振幅が20MHz程度であることを確認した。さらに、観測された同位体シフトや超微細構造分裂幅と文献値の比較により、本ECDLが分光分析用光源として必要な性能を満たす事を確認した。

今後は、多段階共鳴電離分光分析において最も重要となる、レーザー発振波長の安定性の向上を中心を開発をすすめ、分光分析用光源としての利用をめざす予定である。

謝 辞

本研究を進めるにあたって多くの助言を頂きましたドイツマインツ大学K. Wendt博士、C. Geppert氏、S. Philipp氏に深く感謝します。また本研究に必要なレーザー用コントローラーを製作していただいた工作技術グループ、美留町厚氏に感謝します。また、本原稿を読んでいただき、貴重なコメントを頂きました物質科学研究所副所長研究員、大場弘則氏に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) Corwin K L: Doctoral Thesis of Colorado Univ. (1999).
- 2) Bhatia P S, Welch G R and Scully M O : Opt. Comm. 189 321 (2001).
- 3) Gerginov V, Laughman B, DiBerardino D, Rafac R J, Ruggiero S T and Tanner C E : Opt. Comm. 187 219 (2001).
- 4) Oba M, Wakaida I and Miyabe M: Jpn. J. Appl. Phys. 40 357 (2001).
- 5) Koch J, Zybin A and Niemax K : Spectrochim. Acta B57 1547 (2002).
- 6) Lawrenz J and Niemax K Spectrochim. Acta 44B 155 (1989).
- 7) Imasaka T and Ishibashi N: Anal. Chem 62 363A (1990).
- 8) Winefordner J D, Gornushkin I B, Pappas D, Matveev O I and Smith B W: J. Anal. At. Spectrom. 15 1161 (2000).
- 9) Barshick C M, Shaw R W, Young J P and Ramsey J M: Anal. Chem 67 3814 (1995).
- 10) Shine B and Day T: Photonics Spectra March 138 (1997).
- 11) Wieman C E and Hollberg L : Rev.Sci.Instrum. 62 1 (1991).
- 12) MacAdam K B, Steinbach A and Wieman C : Am. J. Phys. 60 1098 (1992).
- 13) Zybin A and Niemax K: Spectrochim. Acta B52 1215 (1997).
- 14) Dahmani B, Hollberg L, Drullinger R: Opt. Lett. 12 876 (1987).
- 15) Ricci L, Weidemueller M, Esslinger T, Hemmerich A, Zimmermann C, Vuletic V, Koenig W and Haensch T W : Opt. Comm. 117 541 (1995).
- 16) Hildebrandt L, Knispel R, Stry S, Sacher J R and Schael F: Appl. Optics 42 1 (2003).
- 17) Tino G M: Phys.Scripta T51 58 (1994).
- 18) Arnold A S, Wilson J S and Boshier M G : Rev.Sci.Instrum. 69 1236 (1998).
- 19) Boshier M G, Berkeland D, Hinds E A and Sandoghdar V: Opt. Comm. 85 355 (1991).
- 20) Conroy R S, Carleton A, Carruthers A, Sinclair B D, Rae C F and Dholakia K : Am. J. Phys. 68 925 (2000).
- 21) Wandt D, Laschek M, Tuennemann A and Welling H : Opt. Letters 22 390 (1997).
- 22) Barbieri B, Beverini N and Sasso A : Rev. Nod. Phys. 62 603 (1990).
- 23) Basar Goe., Basar Gue., Buettgenbach S, Kroeger S and Kronfeldt H-D : Z. Phys. D39 283 (1997).

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光强度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力 エネルギー、仕事、熱量	パスカル	Pa	N/m ²
功率、放射束	ジュール	J	N·m
電気量、電荷	ワット	W	J/s
電位、電圧、起電力	クロン	C	A·s
静電容量	コーロン	V	W/A
電気抵抗	オーム	F	C/V
コンダクタンス	ジーメンス	Ω	V/A
磁束	ウェーバ	S	A/V
磁束密度	テスラ	Wb	V·s
インダクタンス	ヘンリー	T	Wb/m ²
セルシウス温度	セルシウス度	H	Wb/A
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	L, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^8	エクサ	E
10^5	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1~5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクトメートルも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- ECC閣僚理事会指令ではbar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N($=10^4$ dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2)=10 \text{ P(ボアズ)}(\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s}=10^4 \text{ St(ストークス)}(\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa($=10$ bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-5}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J($=10^7$ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{18}	$1 \text{ cal} = 4.18605 \text{ J}$ (計量法)
9.80665	1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{19}	$= 4.184 \text{ J}$ (熱化学)
3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^3	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}	$= 4.1855 \text{ J}$ (15°C)
4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}	$= 4.1868 \text{ J}$ (国際蒸気表)
1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{11}	仕事率 1 PS(仮馬力)
1.35582	0.138255	3.76616×10^{-5}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}	$= 75 \text{ kgf} \cdot \text{m/s}$
1.60218×10^{19}	1.63377×10^{20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{19}	1	$= 735.499 \text{ W}$

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
1	2.70270×10^{11}	1	1	100	
3.7×10^{10}	1		0.01	1	

照射線量	C/kg	R
1	1	3876
2.58×10^{-4}	1	1

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

(86年12月26日現在)

難
分析長寿命核種分析のための波長安定化レーザーの開発（1）リトロ一型外部共振器半導体レーザーの製作

R100
古紙配合率100%
白色度70%再生紙を使用しています