

JAERI-Tech
2004-065



JP0450795



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
(2) ゼーマン効果と干渉縞による4台の
半導体レーザーの同時ロックシステム

2004年10月

宮部 昌文・加藤 政明・大場 正規・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。
入手の間合わせは、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

(2) ゼーマン効果と干渉縞による4台の半導体レーザーの同時ロックシステム

日本原子力研究所東海研究所環境科学研究部

宮部 昌文 ・ 加藤 政明 ・ 大場 正規 ・ 若井田 育夫 ・ 渡部 和男

(2004年9月17日受理)

原子力施設で発生する放射性廃棄物には、既存の方法では分析が困難な核種や、分析に長時間を要する核種が数多く存在する。こうした難分析核種の分析手法を開発することは、放射性廃棄物のクリアランス制度の運用に向けて、今後重要になると考えられる。我々は、このような核種を半導体レーザーで多段階共鳴励起し、イオン化して質量分析する方法の開発を行っているが、半導体レーザーは安価で操作が容易な反面、発振波長が時々刻々変動し、そのままでは多段階励起光源として適さない欠点がある。そこで、本研究ではゼーマン効果を利用してルビジウム原子の吸収線に波長をロックさせた半導体レーザーを製作し、さらにこれを標準として、エタロン干渉計の干渉縞を利用して、多段階励起に用いる全半導体レーザーの波長を安定化させる光源システムを開発した。この光源を用いてカルシウム原子の3段階共鳴イオン化を行い、その性能を評価した。

**Development of Frequency Stabilized Laser System for Long-lived Isotope Analysis
(2) Simultaneous Locking System for Multiple Diode Lasers Using Zeeman Effect and Interferometer**

Masabumi MIYABE, Masaaki KATO, Masaki OBA, 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 diode laser based multi-step resonance photoionization mass spectrometry. The diode laser, however, has one drawback, i.e. its oscillation wavelength is readily drifted by acoustic, electric and optical noise, and thus the laser without frequency stabilization is not suitable for the analysis. In the present study, we have developed (1) the diode laser whose frequency is stabilized to an intense resonance absorption line of rubidium by Zeeman effect and (2) the stabilization system in which diode lasers for 3-step photoionization of calcium are locked to the Rb-stabilized laser using etalon interferometer. Additionally, to evaluate overall frequency stability of the stabilization system, fluctuations in the photoion and fluorescence signals arising from 3-step RIMS of calcium were simultaneously observed.

Keywords : Diode Laser, Frequency Stabilization, Resonance Ionization Mass Spectrometry, Calcium

目次

1. はじめに	1
2. 基準レーザーの波長安定化	3
2.1 波長安定化方法の分類	3
2.2 DAVLL ロック法の原理	4
2.3 開発した DAVLL ロックレーザー	5
2.4 ロック時の波長安定性とロック持続性	7
3. 共鳴イオン化用レーザーの周波数安定化システム	11
3.1 フリンジオフセットロック法	11
3.2 Ca の 3 段階共鳴イオン化による光源の波長安定性の評価	15
4. 結論	18
謝辞	18
参考文献	19

Contents

1. Introduction	1
2. Stabilization for Frequency Standard Laser	3
2.1 Various Stabilization Techniques	3
2.2 Principle of DAVL Lock Technique	4
2.3 Development of DAVL Lock Laser	5
2.4 Frequency Stability of New DAVLL Laser	7
3. Multi-laser Frequency Stabilization System	11
3.1 Principle of Fringe Offset Lock Technique	11
3.2 Frequency Stability of New Stabilization System for 3step RIMS of Ca	15
4. Conclusions	18
Acknowledgement	18
References	19

This is a blank page.

1. はじめに

最近の分析技術の進歩はめざましく、新しい原理や装置の登場によって、分析対象や、検出感度、分析精度は日々拡大している。原子力分野でも、従来の放射化学的な方法や機器分析法の適用が困難な難分析長寿命核種に対して、新たな分析手法の開発が続けられている。しかし既存の方法では要求される分析性能を満たせない難分析対象物はまだ多数存在している。中でも、放射性廃棄物のクリアランス制度の実施に向けて、今後重要性が増すと考えられる廃棄物の汚染濃度の確認分析では、対象核種の中に、クリアランスレベルの分析が困難又は長時間を要する難分析核種が多く存在している。それらの分析手法を開発することは、クリアランス制度の検認に必要なだけでなく、制度の国民的な理解や信頼を得るためにも必要と考えられる。このような分析では、試料数が莫大になることなどから、次のような要件が求められる。

- (1) アバundance感度が高いこと、
- (2) 複雑な前処理が不要であること、
- (3) 短時間で分析結果が得られること、
- (4) 装置がコンパクトで安価であること、

我々は、これらを満たす有望な方法として、半導体レーザーで原子を多段階共鳴イオン化して質量分析する方法に着目し開発を行っている。この方法では、まず試料を蒸発させて原子ビームを作り、これに複数のレーザー光を照射する。波長は原子のエネルギー準位に現れる同位体毎の僅かなエネルギーの差（同位体シフト）を利用して、特定同位体の共鳴波長に精密に同調させる。これによりその同位体だけに光を吸収させ、次々に高い励起状態に移して、イオン化極限直下まで励起させる。この原子に電場や強い赤外線非共鳴光を作用させ、高エネルギーの軌道電子をはぎ取ることでイオン化させる。各同位体の共鳴波長でイオン量を測定し、その比から同位体比を求める。汚染濃度は、簡単な化学分析で定量されるクリアランス対象元素の含有量と、本方法で得られる対象核種の同位体比から算定できる。

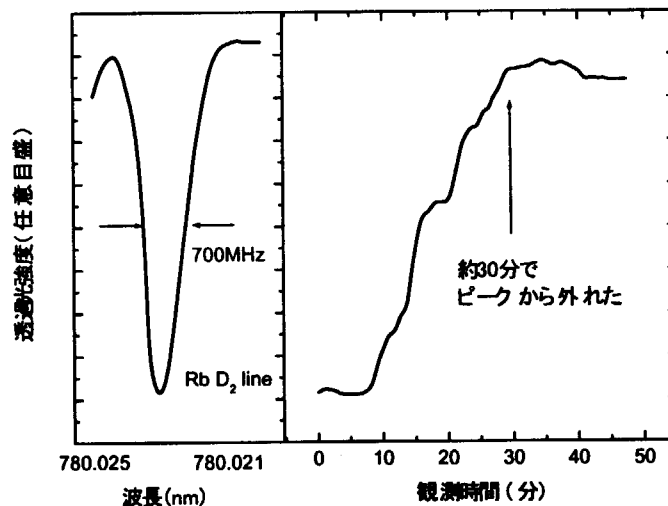


図1 フリーランニング時の外部共振器半導体レーザーの典型的な波長変動

このような共鳴励起を多段階で繰り返す応用では、照射光の波長の精密な制御が重要となるが、半導体レーザーには、発振波長が変動しやすいという欠点がある。一例として図1に、半導体レーザーの波長がRbの D_2 吸収線から時間と共にずれる様子を示す。波長は30分間で約500MHzドリフトし、吸収線の線幅から完全に外れている。このような長い時間スケールの変動は環境の温度変化が主因であるが、より短時間の変動では、振動や電源からのノイズ、電圧変動なども原因となる。半導体レーザーを精密分析に用いるためには、こうした原因を減らすだけでなく、発振波長を能動的に安定化させる仕組みが不可欠となる。

この様な理由から、本研究では、波長を原子吸収線に固定した基準レーザーと、基準レーザーからの任意の周波数差を固定する機構を開発し、これを組み合わせて多段階電離用の全レーザーの波長を安定化させる光源システムを開発した。

2. 基準レーザーの波長安定化

2.1 波長安定化方法の分類

レーザーの波長安定化で重要なことは、基準波長に対する波長のずれをすばやく検出し、強いフィードバック信号を作り出せる S/N 比の高いエラー信号を得ることである。そのために、これまでも多くの波長安定化法が考案されてきた。それらを分類すると表 1 のようになる。

表 1 主な波長安定化法の分類と特徴

固定対象	安定化手法	性能比較				その他の特徴
		再ロック範囲	安定性	簡便性	文献	
原子共鳴線	A. 飽和吸収分光	X (20MHz)	⊙ (~0.2MHz)	X (AOM変調器)	[1]	最も一般的、但し、外乱に弱く、高価、変調法のため応答性が遅い
	B. 飽和偏光分光	△ (60MHz)	⊙ (0.15MHz)	⊙	[2]	飽和吸収法よりS/N良好 意材の歪偏光2色性が影響
	C. 2色性原子蒸気ロック (DAVLL)	○ (500MHz)	○ (0.5MHz/38h)	○ (磁石)		原子蒸気セルの温度安定化要
共鳴空洞	D. 偏光分光 (Hansch-Couillaud)	⊙	⊙	○	[3]	楕円偏光によって空洞からの反射の位相ずれを検波する方法
	E. 偏光分光 (Pound-Drever)	⊙	⊙	X (EOM変調器)	[4]	位相変調と交流検波によって反射率から周波数並列信号を得る方法
	F. Fringe-offset locking	⊙	○	△ (干渉計)		複数のレーザーの干渉縞を用いた相対周波数ロック法

[1]Bagayev 2001

[2]Lee 1994

[3]Hansch 1980

[4]Drever 1983

波長を固定する対象としては、原子や分子の共鳴吸収線を用いる方法や、共鳴空洞（干渉計）を用いる方法が一般的である。吸収線を用いる方法には、ドップラー広がりのある吸収線を用いる方法とドップラーフリー分光で分解能を高めた吸収線を用いる方法があり、さらに、吸収線のピークを検出してピークにロックする方法と、簡易的に吸収線のスロープをエラー信号にするサイドロック法などがある。但し、サイドロック法は、光の強さによってロック位置が変化してしまい、波長安定性が低いので、表の性能はピークロック法のみを想定している。また、エラー信号を得る方法としては、レーザーの波長や、原子分子の共鳴波長を変調させる方法（変調対象としては、AOM の変調周波数や、原子が感じる電磁場の強さなどがある）と、偏光 2 色性等を利用することで変調を用いない方法がある。さらに半導体レーザーのフィードバック制御対象としては、ECDL の波長分散素子（多くの場合、回折格子）の角度や共振器長を変化させるピエゾ素子の電圧や、LD の注入電流などがある。

方式によって、短時間の変動（ジッタ）に効果的なものや、ジッタの低減効果は弱い、長時間のドリフトを抑えて外乱にも強いものがあり、レーザーの用途によって最適な方法が選択される。現在、レーザー分光、原子物理研究、計量標準研究の分野で最もよく利用されている飽和吸収ドップラーフリー分光法は、前者の代表的な方法である。しかし、波長変調が必要で、そのために高価で複雑な機構が要求されることや、変調に起因してノイズが発生するなど、問題点もある。

多段階共鳴電離の基準レーザーでは、ロックが外れると、全てのレーザーのロックが外れてしまう

ことから、長時間ロックを維持できることが最も重要である。そこで本研究の基準レーザーとしては、優れた Robust Lock 法である DAVLL (Dichroic Atomic Vapor Laser Lock) 法を採用した。また固定する原子吸収線としては、常温で蒸気圧が高く、吸収の振動子強度 ($gf=0.67$) も大きいルビジウムの D_2 線 (780.027nm) を利用した。

2.2 DAVLL ロック法の原理

DAVLL ロック法は、磁場存在下の原子吸収線が、ゼーマン効果により、直交する2つの偏光に対して2つに分裂する性質を利用する方法である^{5),6)}。そのロック特性と磁場強度の関係は Yaschchuk⁷⁾らによって報告されている。また Waisk⁸⁾や Petelski⁹⁾, Wang¹⁰⁾らは、本方法をドップラー拡がりのない飽和吸収線に応用し、サブドップラー-DAVLL ロック法を開発している。図2 (a) (b)にその原理を示す。磁場がない場合に縮退している磁気副準位が、磁場の下ではゼーマン効果により磁気量子数 m_j 毎に分裂し、2つの円偏光の共鳴周波数が変化する。図のように磁場に対する応答が線形な領域では、右回り円偏光と左回り円偏光の共鳴周波数の差は $2g_j\mu B$ (但し、 g_j : Lande の g 因子、 μ : Bohr 磁子) となる。そこで原子に直線偏光 (右回り、左回り円偏光が1:1で同位相で重なり合った光) を透過させ、光軸に平行に磁場を印加すると、共鳴中心の周りで、透過する2つの円偏光成分の比率が波長によって変化する。波長を変化させて左、右円偏光の透過光の強度差を測ると、図2 (b)の様な共鳴中心でゼロを通る分散型の信号となる。この信号はレーザーの波長が共鳴中心からどちらに、どれだけずれたかを表す指標となるので、このエラー信号がゼロになるようレーザーの波長をフィードバック制御することで波長が固定できる。この方法は、波長変調等が不要なため、変動に対して即座にフィードバック制御ができ、安価で、外乱に強く安定したロック特性が期待できる。

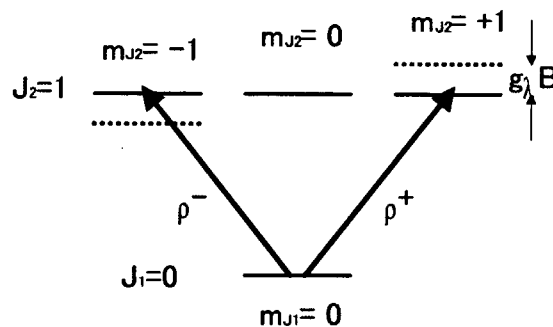


図2 (a) DAVLL 法の原理

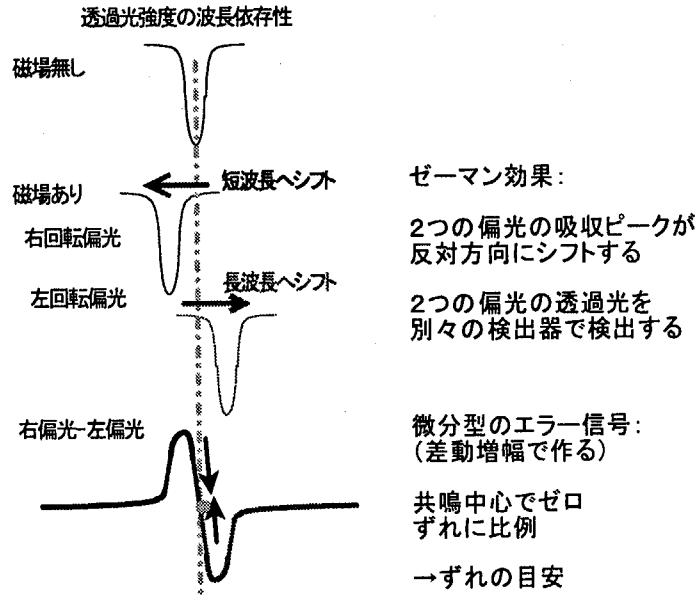


図 2 (b) DAVLL 法の原理

2.3 開発した DAVLL ロックレーザー

図 3 に製作した DAVLL ロックレーザー装置の概要を示す。光源には、LD 素子 (三洋製 DL4140-001 : 定格出力 25mW) と金コートホログラフィック回折格子 (Carl Zeiss 製 : 溝密度 1600 本/mm) の間で Littrow 型共振器を構成した外部共振器半導体レーザー (External Cavity Diode Laser) を用いた¹¹⁾。発振波長は、回折格子の角度や共振器長を決める piezo 素子 (NEC Tokin 製 AE0203D08) の電圧を、外部制御も可能な定電圧電源 (Thorlab 製 MDT694) により 0~150V の範囲で変化させて、共鳴波長に同調させた。光源の出力光 (約 10mW) のうち石英ビームスプリッター (反射率 10%) で反射させた光を、2枚のアイリスを通して約 2mm 径に絞り、ND フィルターで約 400 μW に減衰させて、磁石中に設置した Rb ガラスセル (Hamamatsu 製 HKS-RB19-80/90 長さ:85mm 直径 10mm) に透過させた。磁石には、磁場強度を最適化するため、定電流電源 (HP 6033A) で駆動するソレノイドコイル (東邦電気 IT-114, 外径 100mm、内径 50mm、長さ 150mm) を 2 台直列で使い、Rb セルはその中心軸上にテフロン板で固定した。

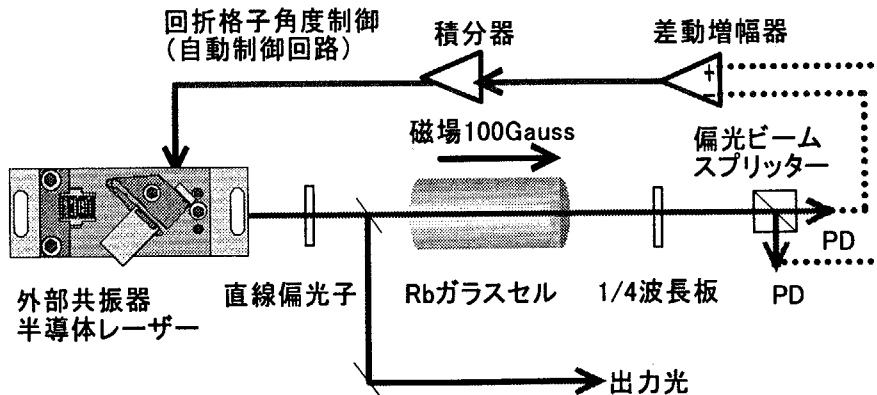


図 3 開発した DAVLL ロックレーザーの構成

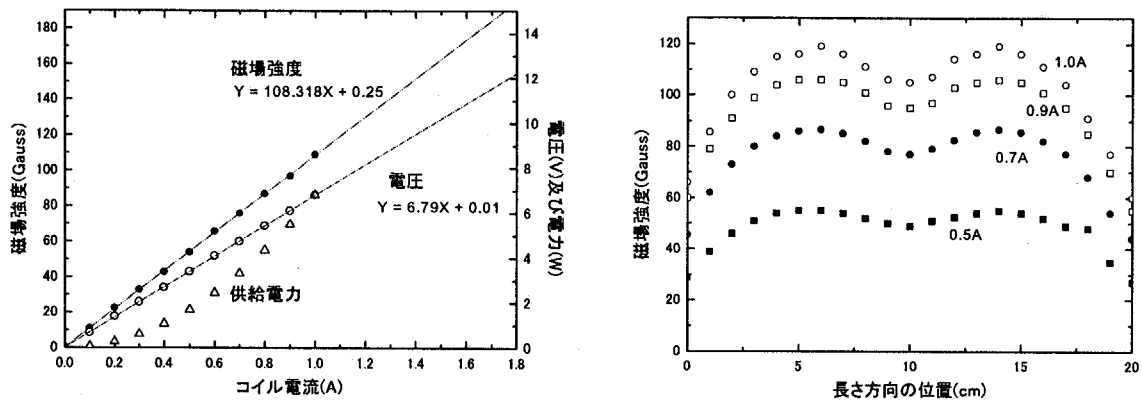


図 4(a) 中心軸上の磁場の電流依存性 図 4(b) コイルの長さ方向の磁場強度分布

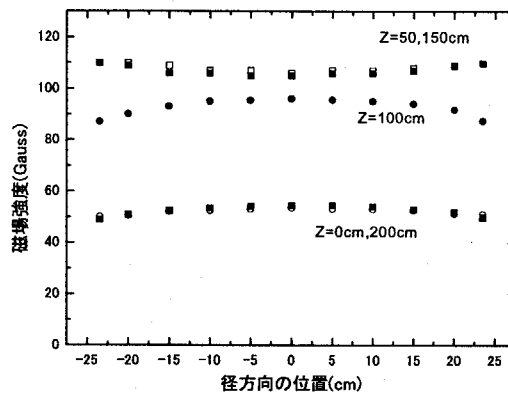


図 4(c) コイルの径方向の磁場強度分布

図 4(a)にガウスメータ (Bell 製 610)で測定した中心軸上の磁場の電流依存性を示す。コイルの最大許容電圧は 12V で、最大磁場は 170Gauss 程度である。電圧はコイルの温度によって変化するが、磁場の強さは電流に対して一定である。コイルの長さ方向及び径方向の磁場強度分布を図 4 (b) (c) に示す。長さ方向の強度分布は 5%以下、レーザービーム断面の分布は 1%以下である。

ルビジウムセルを透過した光の 2つの円偏光成分は、4分の 1 水晶波長板で直交する 2つの直線偏光成分に変換し、さらに偏光ビームスプリッタキューブで水平、垂直偏光成分を分離して、2つのフォトダイオードで独立に検出した。フォトダイオードは入射光強度に対する出力特性の揃ったペアを使用した。得られた 2つの偏光信号は、図 5の差動増幅回路に入力して差信号に変え、続いて図 6の積分回路に入力して、差信号の積分値からレーザーへのフィードバック信号を得た。フィードバック信号は回折格子のピエゾ素子を駆動する電源の外部制御端子に入力した。

このような比例+積分制御方式による波長ロックの持続性能は、積分回路のコンデンサ容量で決まる。ロック開始時点からの変動が大きくなると、設定した周波数を維持するための制御電圧が大きくなり、ついには積分回路の電圧範囲を超えてロックが外れる。フリーランニングの変動は約 2GHz/h なので、追従できる変動を最大 20GHz とすると、使用した ECDL の特性 (+600 MHz/ V_{piezo}) から、ピエゾ電圧は約 30V 変化させる必要がある。ピエゾ駆動電源のゲインは 100 倍のため、本回路で必要

な最大制御出力は 300mV となる。これらの条件を考慮して積分回路のコンデンサの容量を 100nF とした。

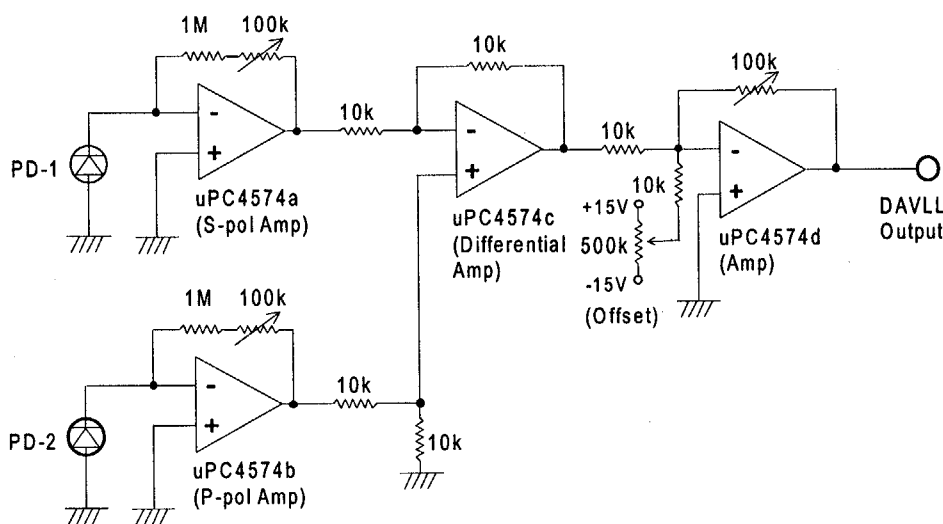


図5 2つの偏光透過光から差信号を作る回路

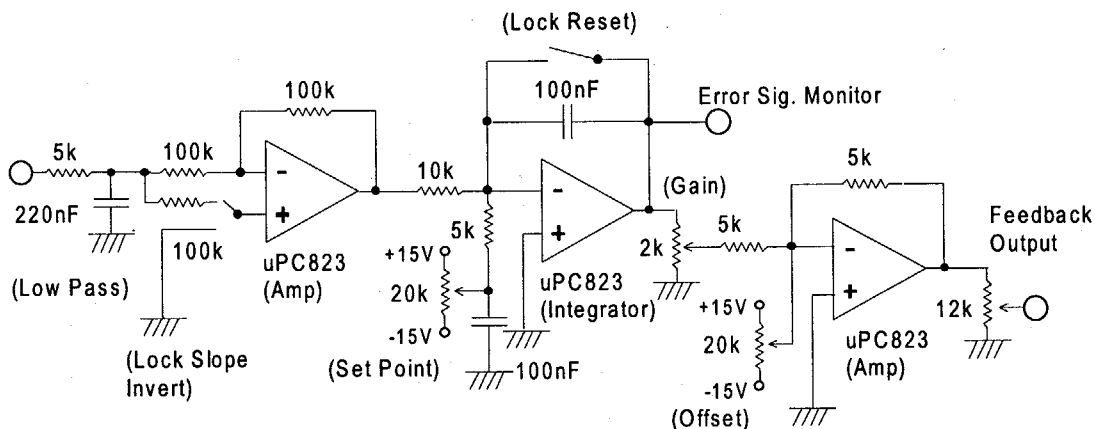


図6 差信号からレーザーへのフィードバック信号を作る回路

2.4 ロック時の波長安定性とロック持続性

Rb の D_2 線は図 7 (a) の上に示すように、主に下準位の超微細構造分裂と 2 つの同位体により、4 つのピークに分裂している。図 7 (b) に関係するルビジウムの準位構造を示す。本研究では、このうち最も吸収の大きい、 ^{85}Rb の $^2S_{1/2} F=3$ から $^2P_{3/2} F'=2-4$ への吸収ピークに波長をロックした。図 7 (a) の下の曲線は、吸収スペクトルに対応する DAVLL 回路で作られた差動信号 (エラー信号) のスペクトルである。 $^{85}\text{Rb}F=3$ のピークに対する右下がりのゼロ交差曲線部分がロック可能な範囲である。磁場 100Gauss、吸収量 1.3V の場合、ゼロ交点付近の傾きは約 1.1mV/MHz である。磁場を変えて同様のスペクトルを測定し、傾きと磁場の関係を調べた結果を図 7 (c) に示す。磁場 170Gauss までの範囲では、磁場が大きいほど信号の傾きが大きく、強いフィードバック信号が得られることがわかった。また、信号が大きくなるほど S/N 比も高くなり、周波数安定性も磁場が強いほど良くなることが分かった。これは傾きが最大になる磁場を 100Gauss とした Corwin⁶⁾ の報告とは異なる結果である。彼らは円板状の永久磁石を多数組み合わせることで磁場を発生させているが、その場合セル内の磁場分布が大きく、磁

場依存性が顕著に現れないと考えられ、これが差の原因と考えられる。

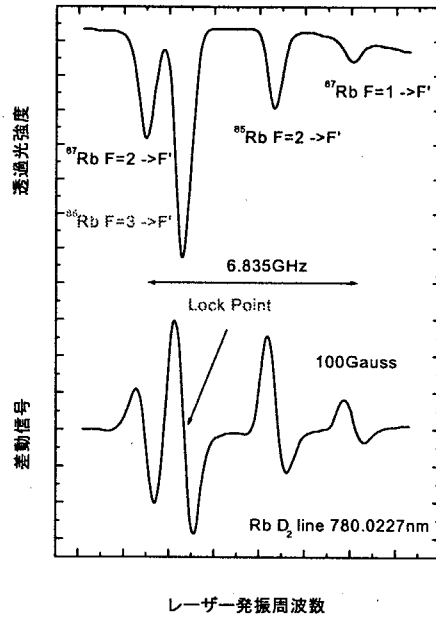


図 7 (a) ルビジウムの D₂ 線スペクトルと DAVLL スペクトル

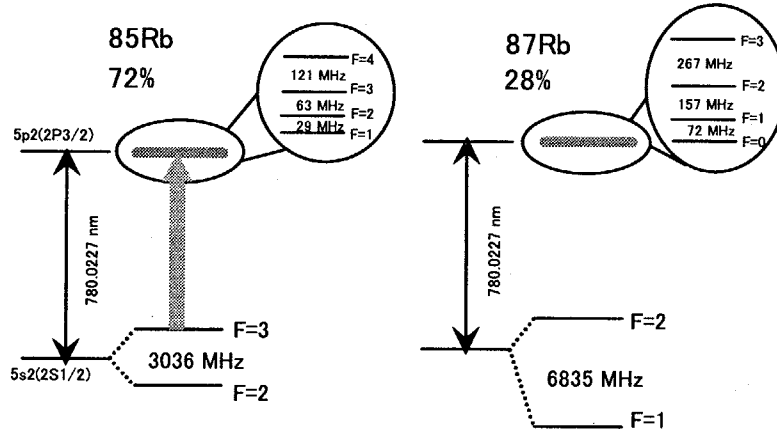


図 7 (b) Rb の D₂ 線に関する準位構造

磁場を変えて測定した DAVLL スペクトルのゼロ交点の周波数、即ちロック周波数は僅かずつ変化する。これは、ドップラー幅の中に隠れている上準位の各超微細構造に対応する吸収線のゼーマンシフト量が異なり、磁場の大きさによって吸収線の形が僅かに変化するために生じる。図 7 (d) にロック周波数の磁場依存性を示す。これを利用すればロックしたまま波長を変えることが可能であるが、逆に、基準レーザーとして用いる場合は、高い波長安定性を得るために磁場を一定に保つ必要があることを意味する。このため本レーザーでは定電流電源を用いて磁場を発生させた。電源の電流リップルの公称値は 15mA で、これによる変動は 1.5MHz 以下である。

エラー信号はルビジウムセルに入射するレーザー光強度によっても変わる。そこで同様に、エラー曲線の傾き、S/N 比、ロック周波数の光強度依存性を調べた。結果を図 7 (e) に示す。光強度を 0.05mW から 0.5mW まで増すと、吸収ピークの飽和幅が現れ始め、S/N 比が若干低下する。しかし

エラー曲線の傾きは光が強いほど大きいことがわかった。また、エラー信号のゼロ交点は 300mW 程度で最も長波長となり、それより強くても弱くても短波長側にシフトすることが分かった。

以上の結果より、磁場強度や光強度を最適にした状態で、DAVLL ロックレーザーの周波数安定性とその持続性の確認実験を行った。図 7 (f) にロック位置近傍のエラー信号の拡大図と、5 時間に渡るロック時のエラー信号の変動を示す。ロック位置のエラー信号の傾きと、観測したロック時のエラー信号の変動から、波長安定性を算出した。ロック時の変動はフリーランニング時の 1000 分の 1 以下の 300kHz/5h 程度と評価された。これは半導体レーザーの時間平均した発振幅 (数 MHz) や原子ビームの残留ドップラー幅に比べて十分小さく、多段階共鳴電離の基準レーザーとして十分安定であると考えられる。

また、ロック状態は 5 時間以上持続し (1 時間程度 LD をウォームアップさせてからロックした場合)、分析時間 (1 試料 30 分程度と予想される) に比べて十分長いことがわかった。ロックが外れる原因は、温度変動が大きい場合に、積分回路の電圧が限界に達して外れる場合と、素子内部の平衡温度がゆっくりと上昇し、ロック開始時とは別の安定なモードが成長して、元のモードが弱くなって外れる場合があり、後者の頻度が高いことがわかった。ピエゾ素子だけを制御する場合、主モードの周波数ドリフトは抑制できるが、別のモードの発生を抑えることはできない。(これは用いた LD 素子の特性にも関係がある。周波数は短波長側へゆっくりドリフトするが、別な安定モードが現れる近傍では周波数変化がないためである。) これを抑えるには、温調素子の駆動電流、あるいは LD 注入電流の制御が必要であるが、別のモードの発生は数時間のスケールで起こるため、エタロン干渉計のフリンジで監視し、別のフリンジが弱く現れ始めてから LD 駆動電流を調整することでも対応可能である。電流を変えれば光強度が変わるが、0.1mA 程度の電流変化によるロック周波数の変化は無視できる。

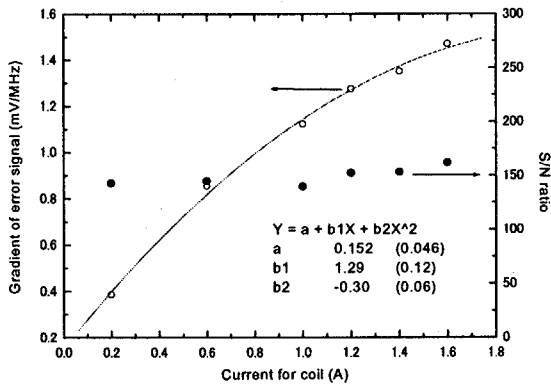


図 7 (c) エラー信号の傾きと磁場の関係

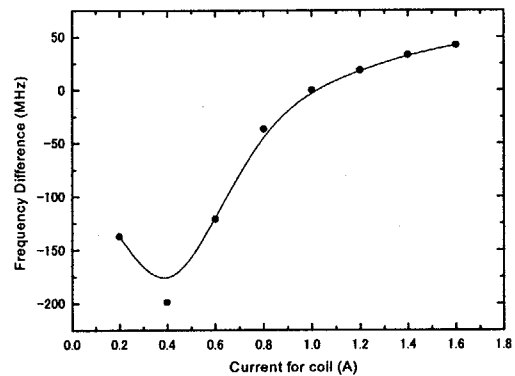


図 7 (d) ロック周波数の磁場による変化

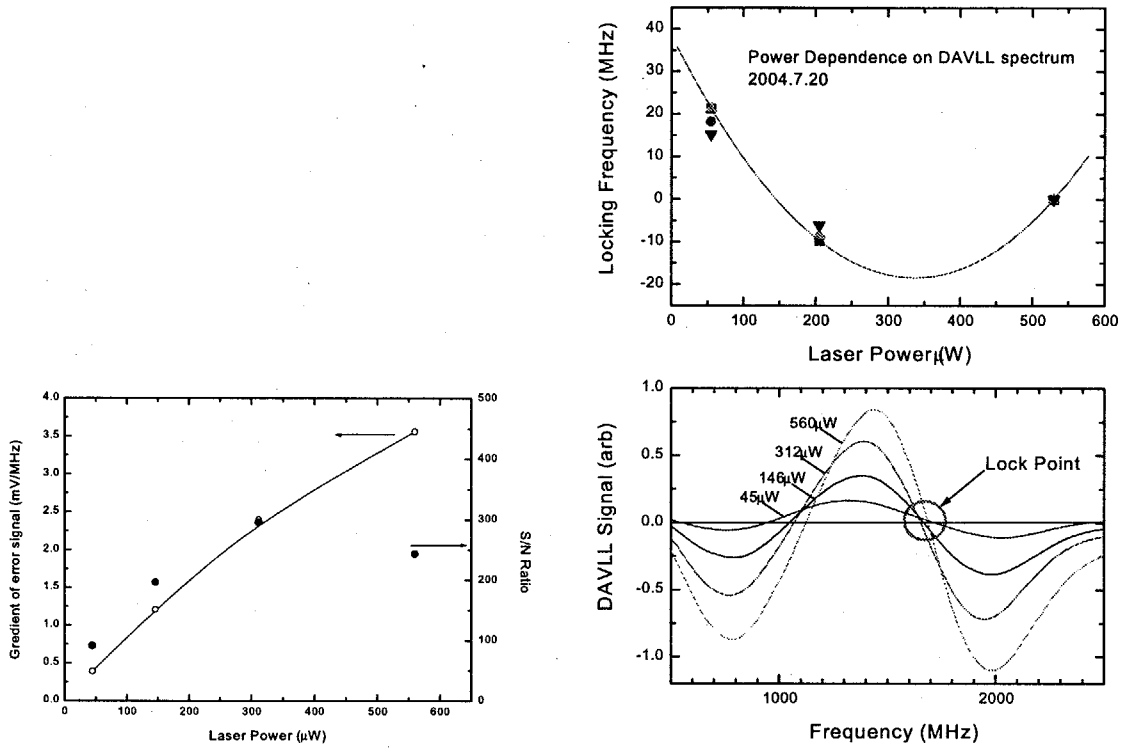


図 7 (e) ロック周波数の光強度による変化

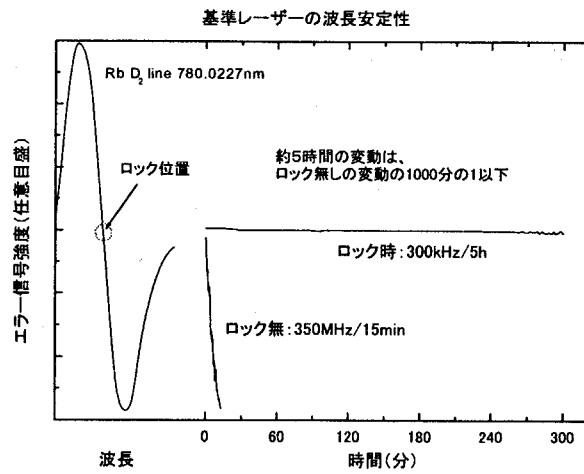


図 7 (f) ロック状態での3時間に渡るエラー信号の時間変化

3. 共鳴イオン化用レーザーの周波数安定化システム

3.1 フリンジオフセットロック法

前章で述べた原子吸収線を利用する波長安定化法は、希望する波長付近に、ロック可能な吸収線が無ければ利用できない。そこでレーザーを任意の波長にロックする方法として、波長安定化した基準レーザーと、その他のスレーブレーザーの周波数差を一定に保持する、フリンジオフセットロック法が考案されている¹²⁾⁻¹⁵⁾。本研究では、レーザーの周波数差を、共焦点ファブリペロエタロン干渉計(CVI 製 SA300-12F, FSR:300MHz, Finesse:200)の干渉縞(フリンジ)で検出することにより、フリンジオフセットロック機構を開発した。干渉縞は2つの光路差が波長の整数倍の位置に現れるので、その現れる位置がレーザーの発振周波数の目安となる。そこで図8(a)(b)のように基準レーザーとスレーブレーザーの干渉縞を同時に観測して、2つの縞の間隔が変化しないようにレーザーを制御することで、スレーブレーザーの波長を安定化した。干渉計は、温度や圧力の変化によって光路長(空気の屈折率)が僅かに変化し、縞の位置が動いてしまうが、温度等が変化しても、2つのレーザーの干渉縞間隔は一定であるため、安定な基準レーザーと比較することで波長安定化が可能である。

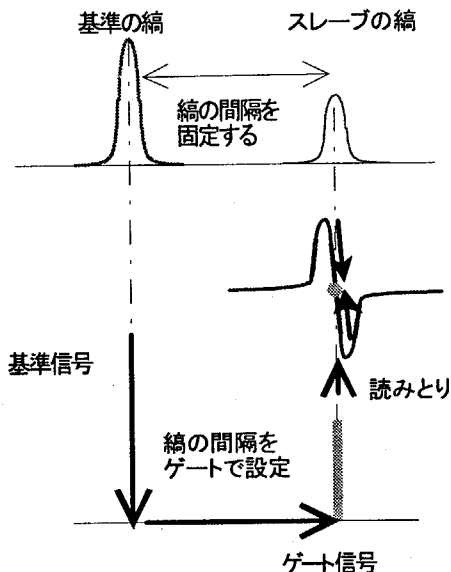


図8(a) フリンジオフセットロック機構の原理

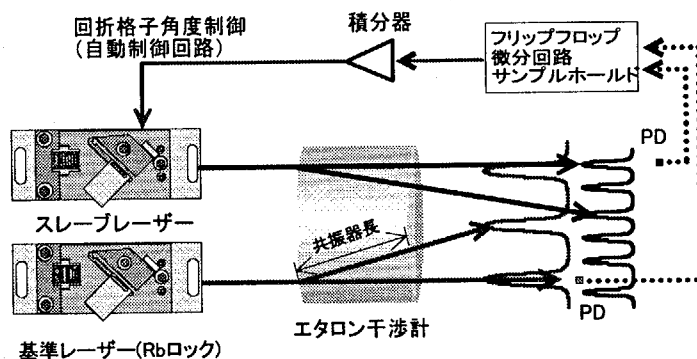


図8(b) フリンジオフセットロック機構の基本的な構成

エタロン干渉計の透過光には同心円状の干渉縞が現れるが、縞の位置を2次元センサー等で検出することは、分解能などの制約があり適当ではない。そこで、高分解能のエタロン干渉計（スペクトラムアナライザー、Scanning Fabry-Perot Interferometer）には、その光路長を数100Hzの周期で変調させるピエゾ素子が内蔵され、ピンホールを通ったエタロンの透過光だけがフォトダイオードで検出される機構となっている。ピエゾ素子の1回の収縮サイクルで現れる干渉縞の数は数個であり、縞の位置は、ピエゾ素子の収縮サイクルの開始時に発生するスタートトリガからの時間差で計測される。

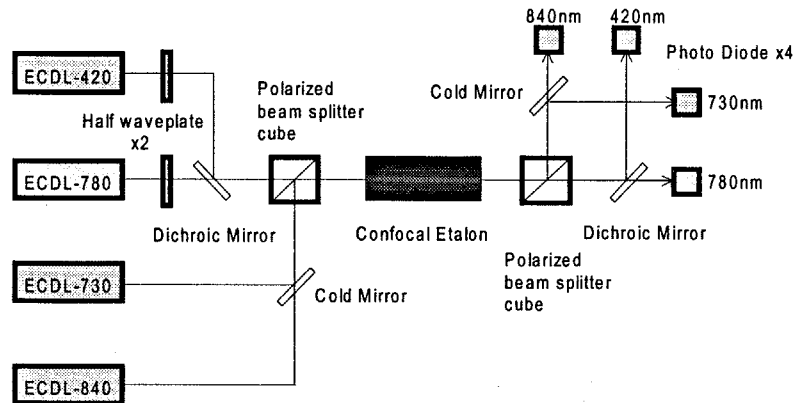


図9 異なる4つの波長の光の干渉縞を1台の干渉計で観測するための光学系の構成

フリンジオフセットロック法で最も重要なことは、基準レーザー光を含む、複数の光の干渉縞を同じ干渉計で同時に観測することであり、波長の異なる光を1つのビームに結合して、干渉計透過後の光を、再び高い純度で分離してそれぞれのフォトダイオードで検出する光学系が不可欠である。そのため本研究では、図9のような偏光素子と2色性ミラー、コールドミラーを組み合わせた光学系を製作した。まず基準レーザー（780nm）と第1励起レーザー（420nm）の垂直偏光を0次の水晶半波長板で水平偏光に変え、2色性ミラー（日本真空光学 LPF560）で結合した。また、第2、第3励起レーザー（730nm, 840nm）の光（垂直偏光）は、2色性コールドミラー（シグマ光機 CLDM-25.4C）で結合した。さらに、これら2本のビームを偏光ビームスプリッタキューブ（PBS-10-8300）で結合し、約1mm径のアイリスを通して干渉計に入射した。透過光は、まず偏光ビームスプリッタキューブで水平、垂直偏光に分け、それぞれを2色性ミラー、コールドミラーで異なる波長毎に分離してフォトダイオードに入射した。フォトダイオードのフリンジ信号は電流電圧変換アンプ（Hamamatsu C2719）と高速アンプ（SRS SR240）で増幅した後、安定化レーザーの信号は図10、その他のレーザーの信号は図11に示す電子回路に入力した。

図10の回路は、エタロン干渉計のスタートトリガから最初に現れるルビジウム安定化レーザーの干渉縞をパルス信号として取り出す回路であり、これを図11の回路のサンプル&ホールド回路のゲート信号とすることで、安定化レーザーの干渉縞からの縞の間隔を制御した。回路の原理は、標準的なパルス発生用ICである555を用いたフリップフロップであり、干渉計のトリガ信号を整形してフリップフロップをセットし、ピーク検出回路で、安定化レーザーの干渉縞のピーク位置でフリップフロップをリセットすることによりパルス信号を発生させた。

一方、図11の回路は、このパルス信号を基に2個の555で遅延時間や幅を整えたゲート信号をサンプル&ホールド回路に入力し、フリンジ信号を微分して作ったゼロクロス信号のゲート位置での値を読み出す回路である。その出力は、設定したゲート位置から、レーザー（の干渉縞）がどちらにど

れだけずれているかを表すエラー信号となるので、これがゼロになるよう DAVLL ロック回路の場合と同様に、積分回路を介して比例制御と積分制御を組み合わせた制御信号を作り出した¹²⁾。これをレーザーのピエゾ素子にフィードバックすることで、レーザーの波長を任意のゲート信号位置にロックした。

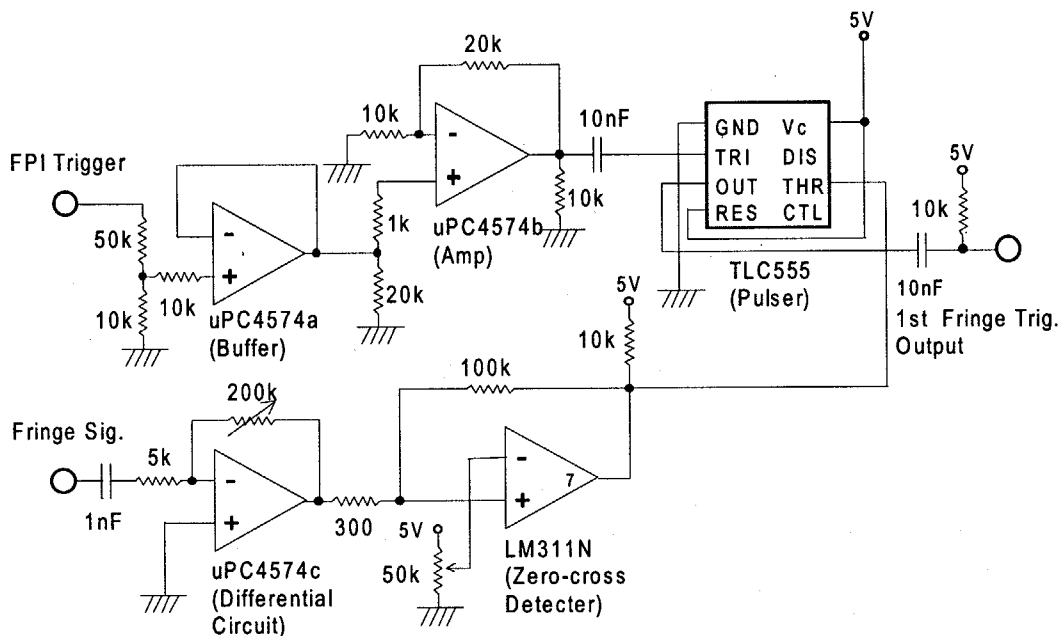


図 10 干渉計のスタートトリガから最初に現れる安定化レーザーの干渉縞をパルス化する回路

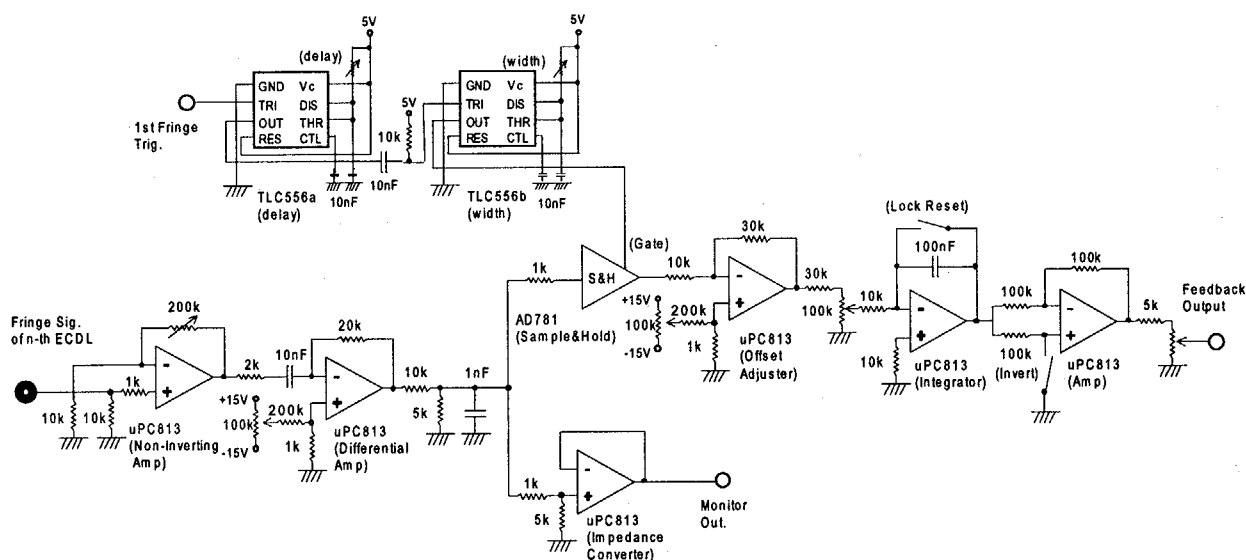


図 11 フリンジオフセットロック法でレーザーへのフィードバック信号を生成する回路

図 12 に開発した FOL 方式による 4 台の半導体レーザーの波長安定化システム全体のブロックダイ

アグラムを示す。図中の回路A～回路Dが図5, 6, 10, 11の回路にそれぞれ対応する。

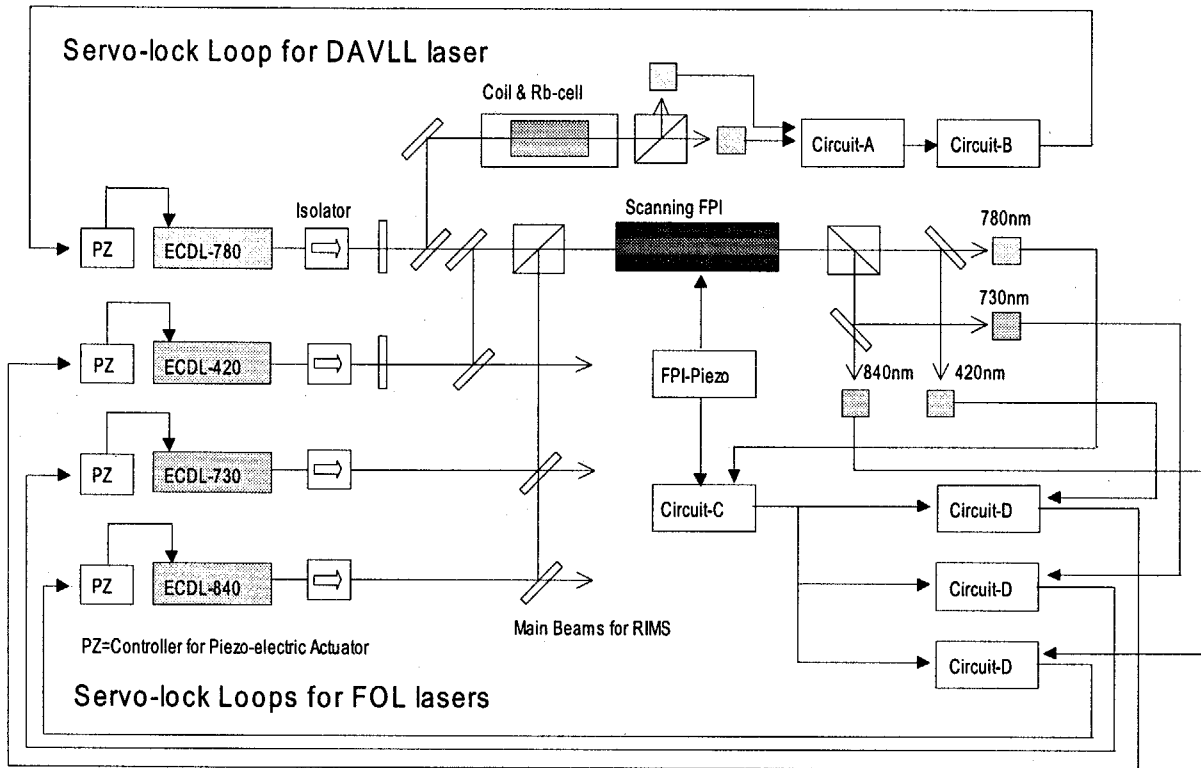


図12 開発したレーザー周波数安定化システム全体のブロックダイアグラム

3.2 Ca の3段階共鳴イオン化による光源の波長安定性の評価

開発した図12の波長安定化レーザーシステムを光源に用いて、実際にCa原子を3段階共鳴イオン化し、イオン量の変動を観測することで、その安定化性能を確認した。図13に観測に用いたカルシウム原子の3段階共鳴イオン化スキームの模式図を示す。

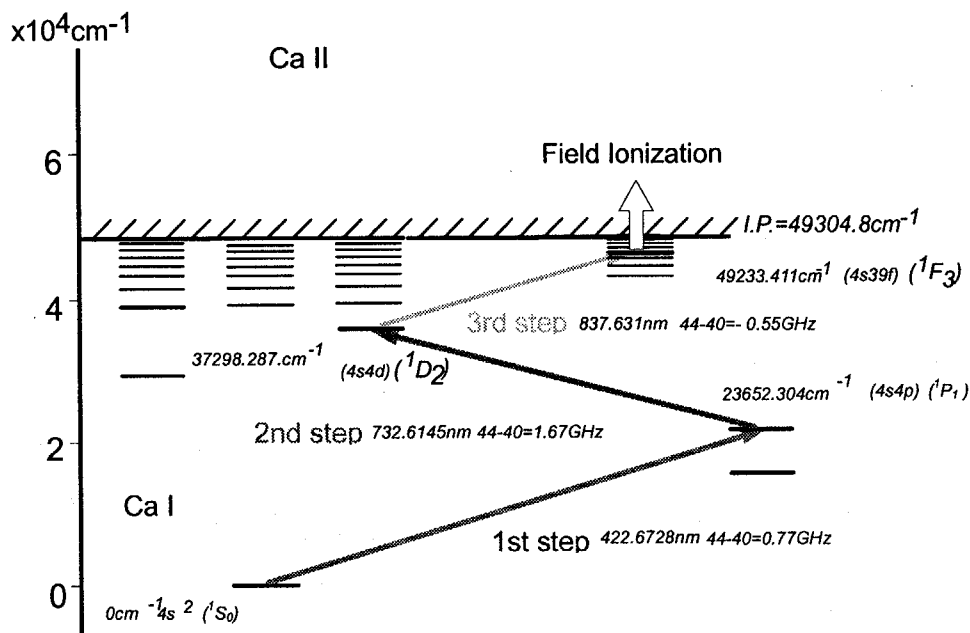


図13 観測に用いたカルシウム原子の3段階共鳴イオン化スキーム

カルシウム原子は金属カルシウムを入れたるつぼを、ヒータで550℃まで加熱して発生させ、コリメータを通して原子ビームとした。原子ビームは光反応領域で3つのレーザー光と交差させた。3段階励起で39f(F₃)のリドベルグ状態まで励起された原子を、タングステンメッシュを介して約2cm直上のイオン検出器に導いた。原子は検出器内部の約2kV/cmの電場によってイオン化させ、セラトロン増倍管(村田製 Ceratron-E)で検出した。図14に、1～3段目のレーザーの周波数を、共鳴波長の近傍で変化させて測定した蛍光及びイオンスペクトルを示す。蛍光スペクトルは原子とレーザーの交差部で発生する光を、レンズ及びカットフィルターを介してフォトダイオード上に集光させて測定した。いずれのスペクトルも、レーザービームを光チョッパ(SRS製 SR540)で変調させ、フォトダイオードやセラトロンの出力信号をロックインアンプ(NF製 5600A)で位相敏感検波することにより測定した。2段目、3段目のスペクトルでは、下の励起段のレーザー波長を、各同位体の共鳴波長にロックして繰り返し測定を行った。ここに示したスペクトルは、こうして得られた質量数40, 42, 44, 48の主要同位体のピークを、同時に測定したエタロンフリンジ信号(周波数マーカー)を参考にして重ね合わせて合成したものである。

次に、このスペクトルを基に、3つのレーザーの波長を⁴⁰Caのピーク波長に精密に同調させてロックし、イオン信号と、蛍光信号の時間変動を約3時間に渡って観測した。図15にイオン信号と、第2励起準位からの蛍光信号の変動を示す。これらの信号の変動は数%以下であり、蛍光スペクトルやイオンスペクトルのピーク幅を考慮すると、各レーザーの波長変動は5MHz未満と評価された。この

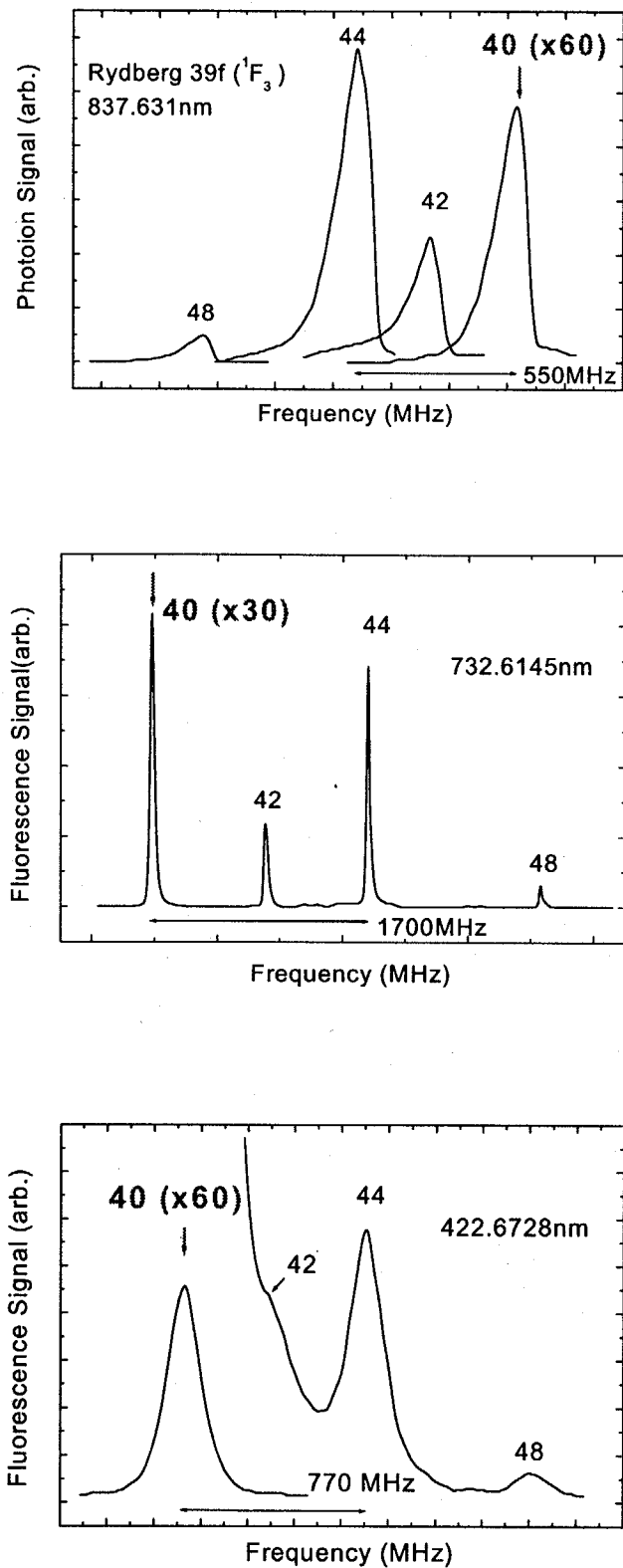


図 14 観測した 1 段目、2 段目の蛍光スペクトルと 3 段目のイオンスペクトル

事から、製作した光源が、共鳴イオン化分析用として十分な性能を持っていることが確認された。

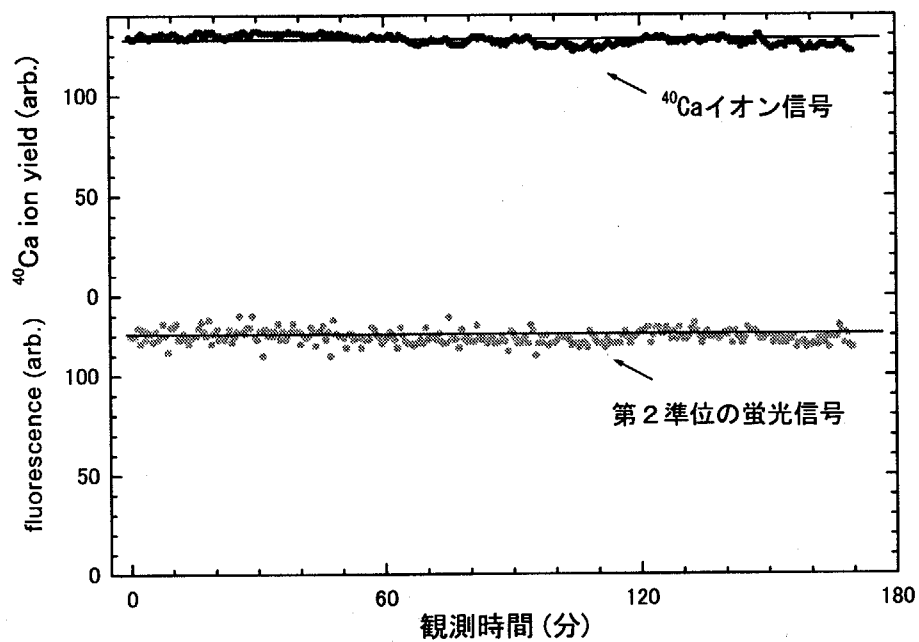


図 15 観測した第2励起準位からの蛍光信号とイオン信号の時間変化

4. 結論

多段階共鳴電離法による難分析長寿命核種の高感度分析のために、励起用半導体レーザーの波長安定化機構を開発した。波長を原子吸収線に固定した基準レーザーと、基準レーザーからの任意の周波数差を固定する機構を組み合わせ、多段階電離用の全レーザーの波長変動を 5MHz 以下に安定化させ、共鳴イオン化分析用光源として十分な性能である事を確認した。DAVLL ロックレーザーを基準とし、青紫レーザーを含む 3 台のスレーブレーザーを安定化したのは、筆者の知る限り、本研究が初めてである。今後は、製作した光源と組み合わせる蒸発源やイオン検出系を整備して、存在比 10^{-7} 以下の ^{41}Ca の検出に向けた開発を進める予定である。

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、本原稿を閲読していただき、貴重なコメントを頂きました物質科学研究部副主任研究員、大場弘則氏に深く感謝します。

参考文献

- 1) S N Bagayev, V I Baraulya, A E Bonert, A N Goncharov and M R Seydaliev : Opt. Comm. 196 201 (2001).
- 2) H S Lee, S E Park, J D Park and H Cho : J. Opt. Soc. Am. 11 558 (1994).
- 3) T W Hansch and B Couillaud : Opt. Comm. 35 441 (1980).
- 4) R Drever, J Hall, F Kowalski, J Hough, G Ford, J Munley and H Ward : Appl. Phys. B31 97 (1983).
- 5) B. Cheron, H. Gilles, J. Hamel, O. Moreau and H. Sorel : J. Phys III 4 401 (1994).
- 6) K. L. Corwin, Z-T. Lu, C. F. Hand, R. J. Epstein and C. E. Wieman : Appl. Optics 37 3295 (1998).
- 7) V V Yashchuk, D. Budker and J. R. Davis : Rev. Sci. Instrum. 71 341 (2000).
- 8) G. Wasik, W. Gawlik, J. Zachorowski and W. Zawadzki : Appl. Phys. B75 613 (2002).
- 9) T. Petelski, M. Fattori, G. Lamporesi, J. Stuhler and G. M. Tino : Eur. Phys. J. D 22 279 (2003).
- 10) J. Wang, S. Yan, Y. Wang, T Liu and T. Zhang : J.Jpn.Appl.Phys. 43 1168 (2004).
- 11) M Miyabe, K Oda, M Oba, M Kato, I Wakaida and K. Watanabe : JAERI-Tech (2004) to be published
- 12) B.G.Lindsay, K.A.Smith and F.B.Dunning : Rev. Sci. Instrum. 62 1656 (1991).
- 13) S. M. Jaffe, M. Rochon and W. M. Yen : Rev. Sci. Instrum. 64 2475 (1993).
- 14) W. Z. Zhao, J. E. Simsarian, L. A. Orozco and G. D. Sprouse : Rev. Sci. Instrum. 69 3737 (1998).
- 15) A. Rossi, V. Biancalana, B. Mai and L. Tomassetti : Rev. Sci. Instrum. 73 2544 (2002).

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
物質質量	モル	mol
光度	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	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	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
線量当量	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 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J
1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バ	bar
ガ	Gal
キ	Ci
レントゲン	R
ラ	rad
レ	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
1 b = 100 fm = 10⁻²⁸ m²
1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	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, 1 eV および 1 u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, ヘクター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。
- EC関係理事会指令では 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 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m²) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))
動粘度 1 m²/s = 10⁴ St (ストークス) (cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	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 ⁻³	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
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸
	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

1 cal = 4.18605 J (計量法)
= 4.184 J (熱化学)
= 4.1855 J (15 °C)
= 4.1868 J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS (仏馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

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(2)ゼーマン効果と干渉縞による4台の半導体レーザーの同時ロックシステム

R100

古紙配合率100%
白化度70%再生紙を使用しています。