

プラズマ診断用狭帯域二波長パルス色素レーザー

松田良信・天崎文晶
藤山寛Narrow Bandwidth Double Wavelength Pulsed Dye
Laser for Use in Plasma Diagnostics

by

Yoshinobu MATSUDA, Fumiaki AMAZAKI
and Hiroshi FUJIYAMA

Nitrogen laser pumped pulsed dye laser system was constructed for use in discharge plasma diagnostics. Double dye laser oscillators with grazing incidence configuration were simultaneously pumped by the single nitrogen laser, thus narrow bandwidth double wavelength laser beams were obtained with a sufficient output power. The dye laser system is applicable to the laser induced fluorescence spectroscopy and the laser optogalvanic spectroscopy.

1. まえがき

近年、プラズマプロセッシングの分野では、高品質薄膜を形成する上で反応ラジカル種のモニタリングおよび制御が重要視されており、従来からのレーザー吸収分光法 (LAS: Laser Absorption Spectroscopy) の他にレーザー誘起蛍光法 (LIF: Laser Induced Fluorescence)^{1,2)}やオプトガルバノ分光法 (OGS: Optogalvanic Spectroscopy)³⁻⁶⁾といったレーザー分光計測が重要な役割を果たしている。また逆に、そこで得られた定量的かつ詳細な結果は、これまで巨視的かつ現象論的に論じられることが多かったグロー放電を、より微視的な観点から理解する手がかりを与えている。放電プラズマと固体表面との巨視的な相互作用過程を微視的な面から研究することは、将来の幅広い工学的応用の点からも、非常に重要である。

以上の理由から、プラズマ中の粒子計測および電界計測に使用する目的で、パルス色素レーザー装置を今回製作した。本論文では、まずプラズマのレーザー分

光における色素レーザーの果たす役割を簡単に述べた後、製作した色素レーザー装置の構成と、得られた色素レーザー光の特性評価結果を報告する。

2. レーザー分光と色素レーザー

図1にレーザー分光計測の概念図を示す。LIFとは、基底状態または準安定状態にある原子・分子にレーザー光を照射して、その原子・分子を共鳴励起し、これより放出される誘起蛍光を観測することによりラジカル原子の絶対密度や粒子束を測定するものである。他方OGSは、放電している気体に光を照射したとき光が吸収されると放電電流が変化する“オプトガルバノ効果”を利用した高感度の分光分析を行うことにより、元素分析を行うものである。これらの分光法を利用して、その元素が存在する電磁場を計測することも可能である^{5,7,8)}。このような分光計測には、必要な波長において単色性の優れたスペクトル線を取り出すことができ、しかも強度も大きい可変波長レーザーが必要であ

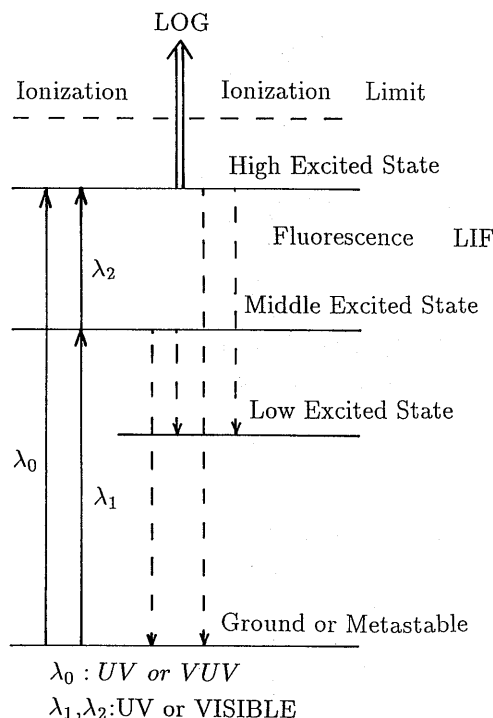


Fig.1 Excitation and Detection scheme for the laser induced fluorescence and the laser optogalvanic spectroscopy

る。LIFとOGSのいずれの方法を利用するにしろ、一般に基底または準安定準位から高励起準位までの単一光子励起には可変波長の紫外光または真空紫外光が必要になるが、光源および光学部品のコストパフォーマンスと取扱の点で、これは現在のところあまり実用的ではない。むしろ紫外および可視域のレーザー光を組み合わせて階段励起することが実際的である。原子や分子の比較的弱い光学遷移でさえ、可変波長パルス色素レーザーを用いて、容易に選択的に励起できる。

パルスレーザー励起色素レーザーでは、増幅段を設けて最適化することにより多くの材料について10~30%の変換効率が得られ、また波長域も0.311~1.285 μm の範囲をカバーするまでになっている。パルス色素レーザー装置の励起光源としては近紫外部のエキシマレーザー、窒素レーザー、Nd:YAGレーザーの第3, 第4高調波などが実用的に用いられる。その中でも特に窒素レーザーは、レーザー利得が大きいため簡単な装置でも発振し数100kWの尖頭出力が容易に得られる。パルスの繰り返し数も数10Hzでも可能である。装置の維持・保守が簡単であり使用ガスがほ

とんどの場合窒素ガスのみである、安全で経費も少なくて済むなどの理由で、分光学的応用に現在もっとも手軽に使われている。

そこで本研究では、LIFとOGSのいずれにも対応し、さらに二段階励起も可能とするために、昨年度製作した高出力高繰り返し窒素レーザー⁹⁾をポンピング光源とした二波長パルス色素レーザーを製作した。

3. 二波長同時発振パルス色素レーザーの製作

ここでは、まず昨年度製作した窒素レーザーの安定化と出力向上に関する改良結果について述べ、つぎに色素レーザーの装置構成について述べる。

3.1 色素レーザーポンピング用窒素レーザー

昨年度製作した窒素レーザー⁹⁾のトリガをより安定化するために、まず高圧部とアース部を逆にした。これにより、トリガピン電極がグラウンド側に配置され、スパークギャップスイッチのトリガが安定してかかるようになった。またこの極性反転により、レーザー主放電電極は充電時にはグラウンド電位に維持されることになり、コロナの発生も低減された。さらにスパークギャップスイッチ間に発生する腐食ガスを除去するために、ギャップスイッチ内のガスを交換できる構造とした。こりにより、ギャップスイッチのメンテナンスが大幅に軽減された。以上の改良により、レーザー出力の安定度が標準偏差で従来の $\pm 10\%$ から $\pm 3\%$ に向上し、ギャップスイッチのトリガ動作の信頼性が向上した(図2)。つぎに、窒素レーザー出力の向上のために、窒素レーザー共振器の全反射ミラーを、従来の誘電体多層膜コートした狭帯域全反射ミラーからアルミ蒸発した広帯域のものに交換した。この結果、レーザー出力は50%向上し最大出力3mJが得られた。

図3に、繰り返し周波数2Hzの条件で得られた窒素レーザー出力エネルギーの圧力特性を示す。圧力を高くするとともに、窒素レーザーの出力は上昇し、最適圧力付近でピークを向かえた後再び減少している。充電電圧が大きいほどピークを迎える最適圧力が高圧力側にずれるのは、放電電界Eに対してE/pによって決まる最適圧力pが存在するためである。

3.2 二波長パルス色素レーザーの装置構成

窒素レーザーを励起源とする色素レーザーの代表的な共振器構成はHänsch型といわれ、ビーム拡大素子を用いて波長選択用の回折格子に入射するレーザービームの広がり角を小さくし、発振スペクトル幅が狭

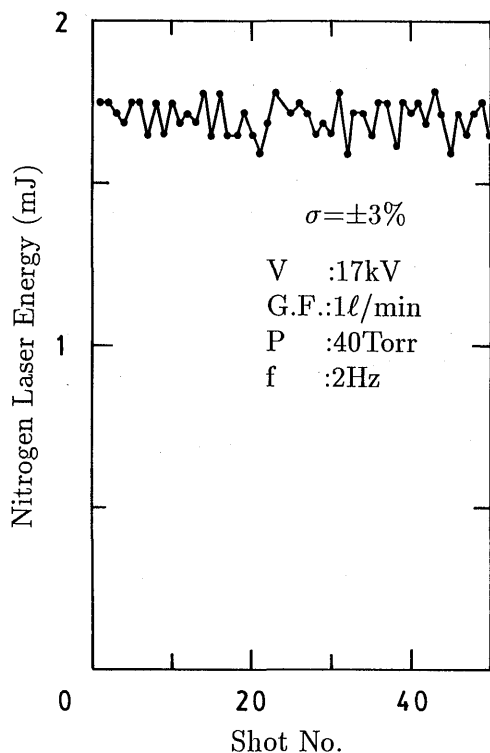


Fig.2 Output energy stability for the improved nitrogen laser

くなるようにしている¹⁰⁾。ビーム拡大素子としては、はじめのころはレンズが使われていたが、現在ではプリズム式のものや、斜入射回折格子を使ったものが、小型で調整も容易なため主流になっている¹¹⁻¹⁵⁾。特に、斜入射回折格子を用いた場合の利点は、従来のHänsch型と比較して以下のようにまとめられる。

- (a) 高価で高品質の色消し望遠鏡やプリズム拡大器を取り除くことができる。
- (b) アライメントが簡単であり、ビーム拡大器の注意深い調整と焦点合わせが不要である。
- (c) ビーム拡大器がないので、光空洞内の表面の数が少なく反射も少ないので、低損失である。
- (d) 大きな直径の回折格子は、より低価格の数mmの幅の小さな回折格子に置き換えられる。
- (e) 共振器長が非常に短いため、短パルス光によるポンピングがより有効に利用できる。
- (f) 波長掃引が、従来の圧力掃引型のものに比べて、同調ミラーを回転させるだけで済み、柔軟性に富む。ここでは我々が製作した斜入射回折格子を用いた色素レーザーの装置構成について、各光学系毎に説明す

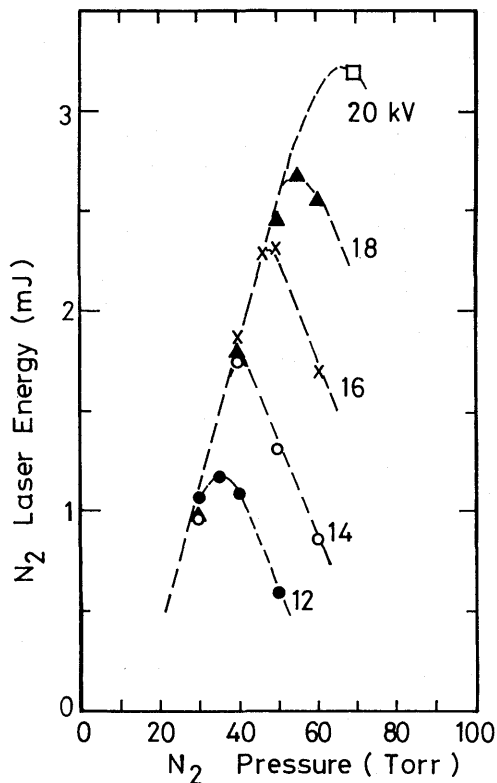


Fig.3 Nitrogen laser output energy versus N_2 pressure for charging voltages of 12kV (black circles), 14kV (open circles), 16kV (crosses), 18kV (black triangles) and 20kV (open square)

る。

図4に示すように、窒素レーザービームを全反射平面ミラーを用いて二本に分け、二つの色素レーザーを同時発振させた。励起光集光光学系は、窒素レーザービームを絞って色素セル上にシート状に照射するための光学系である。まず窒素レーザービーム(断面: 30mm × 8mm)を色素セル幅(10mm)程度まで集光するためにφ=40mm, 焦点距離f=200mmの球面両凸レンズを用いた。さらに、色素セル上でシート状にするために、大きさ30mm × 30mm, 焦点距離f=80mmの円筒レンズを用いた。この円筒レンズには、X軸ステージとゴニオステージを装着し、光軸方向への移動と傾きの調整を可能とした。

色素セルには、四面を光学研磨した10mm × 10mm × 49mmの石英蛍光セルを用いた。色素溶液は、将来的にネオンの階段励起実験を行うことを考慮して、ローダミン6G(R-6G)およびクマリン120(C-120)のエタノー

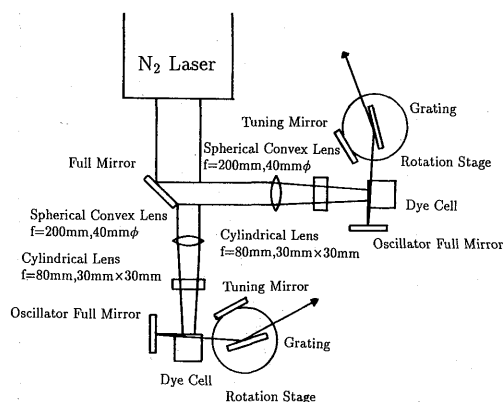


Fig. 4 Schematic diagram of the nitrogen laser pumped double-wavelength pulsed dye laser

ル溶液 (濃度 5×10^{-3} mol/l, 3 ~ 4 cc) の 2 種類を使用した。エタノールは非常に蒸発が早いので、色素溶液の濃度が変化しないように色素セルはテフロン栓付のものにした。色素セルは色素セル壁面での色素レーザー光の多重反射を防ぐため 20 度ぐらい傾ける必要があるため、その調整のために回転ステージに取り付けた。なお、色素の循環を行っていないので、色素レーザーの発振繰り返しは最高で 5 Hz 程度が限界である。

色素レーザー共振器は、片側に全反射平面ミラー (直径 $\phi = 30$ mm) を用いた開放共振器構造とした。回折格子からの一次回折光を反射する波長同調用全反射平面ミラーには、直径 $\phi = 50$ mm の全反射平面ミラーを用いた。回折格子面の法線方向と波長同調用全反射ミラー法線方向とのなす角 (回折角) により発振波長が決まるので、このミラーを回転ステージの上に取り付けて、回折角を変えられるようにした。

斜入射回折格子は、回折格子面が光軸とほぼ平行になるような浅い入射角で使用される回折格子である。本研究では寸法が $12.7 \text{ mm} \times 50.8 \text{ mm}$ 、格子定数 2400 本/mm のホログラフィック回折格子 (オプトメトリックス製) を用いた。回折格子の角度調節は、回折格子への入射角を調整するための回転ステージと、光軸と回折格子溝を垂直に調整するためのゴニオステージを用いて行った。

4. 二波長パルス色素レーザーの発振特性

文献 15 の補足の記述にしたがって色素レーザー共振器の軸合わせを行うと、容易にレーザー発振が得られた。色素レーザーの出力エネルギーの測定は、ジュ-

ルメーター (gentec 製, ED-100A, エネルギー感度 104 V/J, 受光部直径 4.3 mm) を用いて行い、レーザーのパルス毎の出力変動があるので、4 または 8 パルスの平均値を測定値とした。レーザー光の時間波形は、高速のフォトピンダイオード (浜松ホトニクス) で受光し、高速デジタルストレージオシロスコープ (フィリップス製, 500 MHz) で観測した。レーザー光の絶対波長は、レーザー光を ND フィルターで減衰させ、光ファイバーを通して分光器で測定した。実験中の窒素レーザーの動作条件は、ガス流量 G. F. = 1 l/min, 繰り返し周波数 $f = 2$ Hz である。

なお、以降の図の説明で、ASE と記したものは、回折光をさえぎっても発生する増幅された自然放出光出力のことで、色素レーザーの誘導放出光出力とは異なるものである。図中で ASE と併記してある場合は、ASE 成分を含んだ色素レーザーの全出力エネルギーを表している。図中で ASE と併記していない場合は、ASE 成分を差し引いた純粋なレーザー発振出力を示している。

4. 1 色素レーザー出力の励起エネルギー依存性

図 5 に、窒素レーザーによるポンピングエネルギーに対する色素レーザー出力エネルギーの変化を示す。R-6 G については、全エネルギーも ASE もともに励起エネルギーにほぼ比例して増加しているが、C-120 の場合は、全エネルギーも ASE もともに励起エネルギーに対して線形というよりむしろ巾乗の形で増加している。他の条件が全く同一であれば、窒素レーザーエネルギーと色素レーザー出力は単に比例するはずである。C-120 色素レーザー出力の非線形性の原因は、窒素レーザーエネルギーを変えたときに窒素レーザービームの空間のプロファイル自体が変化しているためと考えられる。いずれにせよ、最大出力は C-120 で約 $70 \mu\text{J}$ 、R-6 G で約 $40 \mu\text{J}$ であることがわかる。なお、図 5 の結果は、約 30 万ショット動作後の劣化が進んだ色素についてのものである。未劣化の色素の場合、この図の 2 倍程度の出力が得られることを確認している。色素の劣化を除いた場合の全体的な発振効率率は、約 6 % と評価される。

4. 2 色素レーザー出力の発振波長依存性

まず図 6 に、R-6 G レーザーの発振波長と波長同調用全反射ミラーの回転角 (マイクロメーターの読み) との関係を示す。図より両者は比例関係にあることが確認できる。この場合、マイクロメーターの読み 1 mm の変化が、回折角 1° の変化に対応する。図から波長

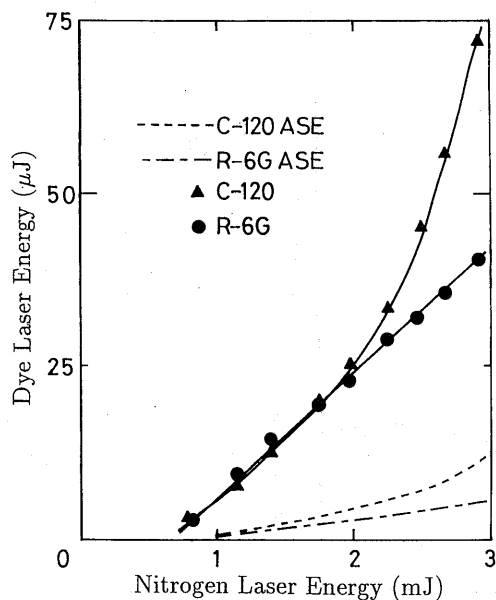


Fig. 5 Total dye laser output energy versus pumping energy for R-6G dye laser (black circles) and C-120 dye laser (black triangles). ASE levels are also indicated by a point dotted and dotted lines for R-6G and C-120 dye lasers, respectively

変化の割合は、マイクロメータの読みと4.375nm/mmの関係があることがわかる。回折角調節用マイクロメータの精度(±1μm程度)から、実際の波長同調精度は±4.4pm程度と予想でき、分光実験には十分問題ない。C-120に関しても同様の波長掃引直線が得られ、その場合の波長同調精度は約±3.7pmと評価された。

図7に、ポンピングエネルギー2.3mJで得られた色素レーザー出力エネルギーの発振波長依存性を示す。C-120の発振波長範囲は428nm~461nmで、最大出力エネルギー約40μJが441nm付近で得られている。ローダミン6Gの発振波長範囲は572nm~611nmで、最大出力エネルギー約30μJが587nm付近で得られている。いずれの色素に関してもASE成分は全色素レーザー出力の10~20%を占めるが、この比は全波長で積分したレーザー出力とASE出力のエネルギー比である。実際に重要なのは、レーザースペクトルピークとASEスペクトルピークの比であり、これは1:10⁻⁴程度と推定される。ただし、色素レーザーの同調スペクトルの裾野付近で使用する場合は問題になる可能性がある。

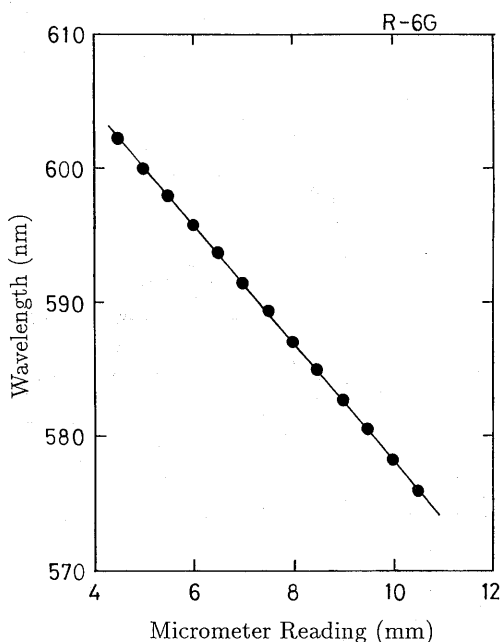


Fig. 6 An example of the wavelength-tuning characteristic of the R-6G dye laser. Micrometer reading is proportional to the change of diffraction angle

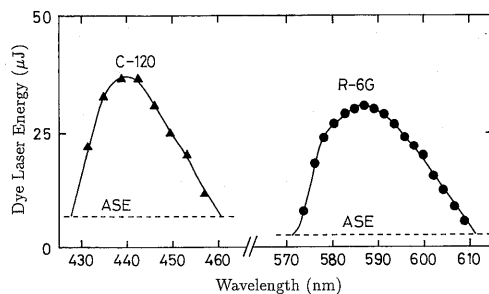


Fig. 7 Dye laser output tuning curves in total energy per pulse at a repetition rate of 2Hz for the nitrogen laser pumped dye lasers (R-6G and C-120). It is noted ASE components are included

ASEレベルを低減するためには、色素セル側の共振器全反射ミラーを、反射率4~20%程度のミラーに変更し、出力カプラとして使用すればよい。

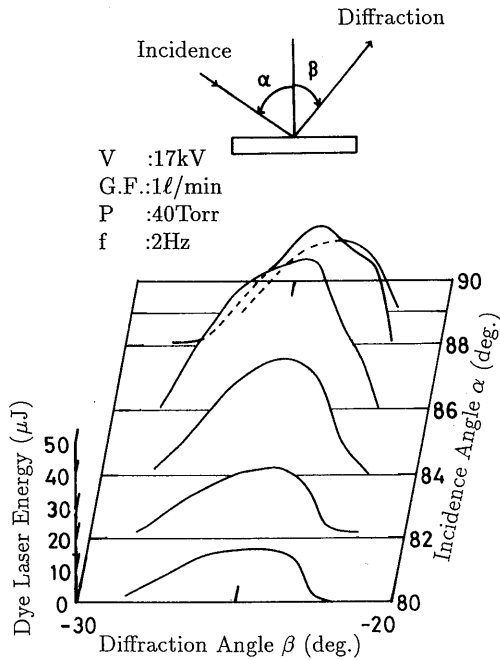


Fig.8 Dye laser output tuning curves in lasing energy per pulse at a repetition rate of 2Hz for the nitrogen laser pumped dye laser (R-6G) as a function of grating incidence angle

4. 3 色素レーザー出力の入射角依存性

図8に、s偏光入射の場合の回折格子入射角 α と回折角 β に対する色素(R-6G)レーザー出力エネルギーの変化の様子を示す。 α を $80^\circ \sim 89^\circ$ まで変えても、発振波長範囲(発振する β の範囲)はほとんど変化しないことが確認できる。また、色素レーザーの出力は $\alpha = 86^\circ$ 付近で最大であることがわかる。通常の平面回折格子では、入射角 α が小さいほど回折効率が高いとの報告がある¹²⁾。それと傾向の異なった図8の結果は、実験に使用したホログラフィック回折格子が斜入射用に最適化されているためと考えられる。また、一般に回折格子へのs偏光入射よりp偏光入射のほうが高い効率を得られるとのデータが過去に示されているが¹²⁾、我々が試した限りでは、s、pいずれの偏光方向でも色素レーザー出力には顕著な違いは見受けられなかった。

4. 4 色素レーザーのパルス幅

図9に、オシロスコープで観測した色素レーザーパルス波形を示す。この図からわかるように色素レーザーパルスの半値幅は、10ns程度である。しかし、同

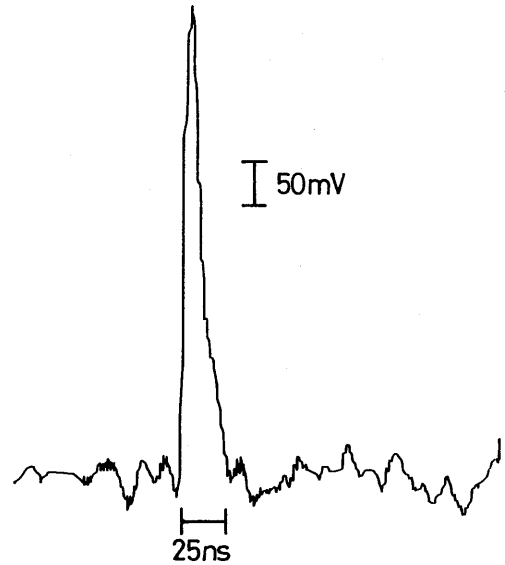


Fig.9 Temporal waveform of the nitrogen laser pumped dye laser

軸ケーブルを含めたフォトピンダイオード光検出回路全体の時間応答が $5 \sim 6$ ns程度と見積られるので、実際の色素レーザーパルスは $7 \sim 8$ ns程度と考えられる。一般に、高気圧動作の窒素レーザーに比べ、低気圧窒素レーザーのパルス幅が広いことが知られている。本実験で使用した低気圧動作の窒素レーザーのパルス幅は10ns程度であり、色素レーザーパルス幅もこれを反映しているようである。

4. 5 色素レーザーのスペクトル幅

色素レーザーのスペクトル幅の確認は、レーザー分光の際の、飽和レーザーパワーの評価、原子・分子スペクトルへの同調に関連して重要である。スペクトル幅の測定は、色素レーザーの波長を掃引し、エアギャップファブリーペローエタロン(溝尻光学:自由スペクトル間隔 1.67cm^{-1} ,反射率99%)の透過光強度の変化から求めた。その結果、R-6GとC-120のいずれの色素レーザー光についても、回折格子入射角が 89° のとき約10pm程度のスペクトル幅であることが確認された。

斜入射回折格子を用いた色素レーザーのスペクトル幅 $\Delta\lambda$ は、回折格子への入射角 α と回折格子からの出射角 β とで決定され、一般に次式のように表される¹⁵⁾。

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda \cos\alpha}{2(\sin\alpha + \sin\beta)} \left[\left(\frac{l \cos\alpha}{2L} \right)^2 + \left(\frac{w}{L} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (1)$$

ここで、 λ は発振波長、 α は回折格子入射角、 β は回折角、 l は回折格子の照射領域の長さ、 L は色素セルと回折格子との距離、 w は色素活性領域のビームウエスト（ビーム半径）である。上式は、 $L = L_R (= \pi w^2/\lambda$: レーリー長) のとき最小になり、

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \sim \frac{\sqrt{2}\lambda}{\pi l(\sin\alpha + \sin\beta)} \quad (2)$$

となることがわかる。本実験では $L \sim 10\text{cm}$ としているので、 $L = L_R$ の条件は $w = 0.14\text{mm}$ とすれば成立し、そのときスペクトル幅は（ $\lambda = 588\text{nm}$, $\alpha = 89^\circ$, $\beta = 24.3^\circ$, $l = 4\text{cm}$ として）約 2.8pm になることが予想される。したがって、現時点でスペクトル幅が 10pm 程度と大きい原因は、今回の実験では色素活性領域のビームウエスト w が実際はもっと大きく、 L_R が L より大きくなっているためと考えられる。分解能向上を目指しスペクトル狭く化を達成するには、 α をさらに 90° に近づけることとこの点の改良が必要である。

4. 6 色素レーザーの偏光特性

色素レーザーの偏光特性は、レーザー分光の重要な要素である。図10に、色素レーザー出力光の偏光フィルター透過特性を示す。図の縦軸は規格化した透過光強度で、横軸は鉛直軸を基準にした偏光角を表す。図中の理論曲線は完全直線偏光した場合のもので、実験値（黒丸）と理論曲線とはよく一致している。以上より、本色素レーザーの偏光方向はほぼ完全に鉛直方向に直線偏光していることが確認された。

5. まとめ

放電プラズマ中の粒子計測および電磁界の計測に用いるために、ローダミン6Gとクマリン120の二種類の色素を用いた窒素レーザー励起二波長パルス色素レーザーを製作し、その発振動作を確認した。色素レーザーの出力特性を測定した結果を要約すると以下の通りである。

- 1) 色素レーザー出力は、それぞれの色素レーザーで最大 $100\mu\text{J}$ 前後が可能である（効率6%）。
- 2) 定常動作で30万ショット経過した後も、色素レーザー出力は、それぞれ数 $10\mu\text{J}$ である。
- 3) 回折格子入射角が 86 度付近の時、最も大きな色素レーザー出力が得られる。
- 4) 色素レーザーのパルス幅は約 $7 \sim 8\text{ns}$ 程度と見積られる。

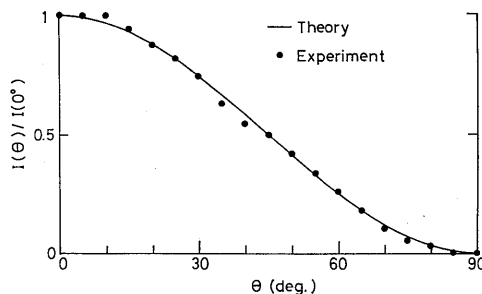


Fig. 10 Polarization characteristics of the nitrogen laser pumped dye laser

- 5) 波長精度は、それぞれの色素レーザーとも±4 pm程度である。
- 6) スペクトル幅は、いずれの色素レーザーとも 10pm 程度である。色素励起深さと共振器長を最適化すれば、 5pm 以下に狭く化できる見込みである。
- 7) 偏光は、ほぼ完全に直線偏光である。

今回製作した窒素レーザー励起二波長パルス色素レーザーは、スペクトル幅とASE、電磁ノイズの点でまだ改良すべき点は多いが、種々の放電プラズマ中のラジカル計測や電界計測に十分適用可能である。現在、我々は陰極シース内の電界測定を目的として二段階励起を利用したOGS実験を実行中であり、その詳細は別に報告する予定である。

終わりに、色素レーザー装置設計について、ご助言いただいた九州大学、前田三男教授、岡田龍雄助教授、本田親久助教授、博士3年の興氏の諸氏に感謝致します。本研究の一部は、文部省科学研究費奨励研究Aの補助を受けた。

参考文献

- 1) プラズマ・核融合学会編、「プラズマ診断の基礎」名古屋大学出版会（1990）208.
- 2) 島津備愛編、「分光化学分析のためのレーザー」学会出版センター（1986）.
- 3) R. B. Green, R. A. Keller, G. G. Luther, P. K. Schenck, and J. C. Travis, Appl. Phys. Letters, Vol. 29 (1976) 727.
- 4) R. Shuker, A. Ben-Amar and G. Erez, Optics Communications, Vol. 39 (1981) 51.
- 5) D. K. Doughty, S. Salih and J. E. Lawler, Physics Letters, Vol. 103A (1984) 41.
- 6) E. A. Den Hartog, D. A. Doughty, and J. E. Law-

- ler, Phys. Rev. A, Vol. 38 (1988) 2471.
- 7) J. Deouard and N. Sadeghi, Optics Communications, Vol. 57 (1986) 239.
 - 8) C. A. Moor, G. P. Davis, and R. A. Gottscho, Phys. Rev. Letters, Vol. 52 (1984) 538.
 - 9) 松田, 藤山, 長崎大学工学部研究報告 第21巻第36号 平成3年1月 1-8頁.
 - 10) T. W. Hänsch, Applied Optics, Vol. 11 (1972) 895.
 - 11) L. G. Nair, Progress in Quantum Electronics, Vol. 7 ed. by T. S. Moss and S. Stenholm (1982) 153-268.
 - 12) F. J. Duarte, "*Dye Laser Principles*" ed. by F. J. Duarte and L. W. Hillman, Academic Press, New York (1990) 133-183.
 - 13) A. Corney, J. Manners and C. E. Webb, Optics Communications, Vol. 31 (1979) 354.
 - 14) I. Schosan and U. P. Oppenheim, Optics communications, Vol. 25 (1978) 375.
 - 15) M. G. Littman and H. J. Metcalf, Applied Optics, Vol. 17 (1978) 2224.