レーザー技術ノート

誘導反ストークスラマン散乱による紫外ピコ秒光源

森田 紀夫*・矢島 達夫*

(1984年3月9日 受理)

Picosecond UV Light Source by Stimulated Anti-Stokes Raman Scattering

Norio MORITA* and Tatsuo YAJIMA*

(Received March 9, 1984)

1. はじめに

紫外, 真空紫外域で数ピコから数10ピコ秒の超短パルスを得ようとする場合, この波長域のレーザーを直接モード同期して得ることが相当難しい現在では, もっと長波長の超短パルスレーザー光の波長変換に頼らざるを得ない。ガスの誘導ラマン散乱における反ストークス光発生による波長変換は, 結晶を用いた高調波発生や和差周波混合と同様に有効な方法である。特に前者は, 媒質として H_2 ガス等を用いれば200nm以下のいわゆる真空紫外域においても透明なので, この波長域の超短パルス光発生においても有効であるという利点がある。

ガスの誘導ラマン散乱によって紫外, 真空紫外域のコヒーレント光を得ようとする試みは, ナノ秒領域においてはこれまでいくつか行なわれている^{1)~4)}。しかしピコ秒の領域では, 1次のストークス光についてはこれまでよく調べられてきているが, 高次の反ストークス光に関しては発生自身についてもほとんど報告がなく, ましてパルス幅や変換効率等の性質が調べられ

た例はない。通常ラマン媒質としてよく用いられる H_2 ガスではラマン遷移(振動遷移)における位相緩和時間が10気圧で600ps程度であり⁵⁾, ピコ秒の励起パルスを用いるとそこに生ずるラマン過程は, パルスの持続時間全体を通じて過渡的である。この時, 1次のストークス光は過渡的誘導ラマン過程に特有なパルス幅の短縮, ピークの遅れ等の性質を示すことが知られている^{6)~8)}。このことがナノ秒の励起の場合とは大きく異なる点であり, その性質が高次の反ストークスパルスにどのような影響を与えるかは実用上も関心が持たれる。一方, ピコ秒パルスの方がそれと同程度のエネルギーを持つナノ秒パルスよりもはるかに高いピーク強度を持っているので, これが変換効率にどのように反映されるかも調べられる必要がある。

筆者等は以上のことを念頭において, モード同期YAGレーザーの2倍高調波を励起光源とし, 高圧の水素ガスを媒質とする誘導ラマン散乱によって8次(192nm)までのピコ秒反ストークスパルスを発生させ, それ等の性質を調べた。

* 東京大学物性研究所 (〒106 東京都港区六本木7-22-1)

* Institute for Solid State Physics, University of Tokyo (Roppongi, Minato-ku, Tokyo 106)

尚、本稿の内容は主として参考文献9の要約である。

2. 水素ガスマンレーザ系

使用した高圧ラマンセルは全長約30cmの肉厚ステンレス管で、両側を直径5cm厚さ2cmの合成石英板で封じている。管の内径及び石英板のおさえ板の窓の直径は2cmである。外部のガス操作系も含めて十分に安全率を見込んで100気圧まで耐えられる設計となっている。ガス配管系のうちセルの直前には $2\mu\text{m}$ のフィルターが挿入されており、ボンベや配管内のサビや微小なゴミ等がセル内に入ることを防いでいる。これを省くと石英窓面にサビ等が付着し、そのまま高出力レーザー光を入力すると思わぬ損傷を窓板面に与え、ひいては大きな事故を起こす原因にもなり得るので注意を要する。

励起光としてはフラッシュランプ励起モード同期YAGレーザー及び増幅システムからの単一パルスの第2高調波(532nm, 約25ps, 約10mJ)を用いている。励起光はFig.1に示すように $f=20\text{cm}$ のレンズで集光してセルに入射し、出力光はやはり $f=20\text{cm}$ の合成石英レンズによって平行光に戻して後60°分散プリズムによって励起光及び各次数のストークス, 反ストークス光に分けられる。

各次数のラマン光のパルスエネルギーはGen-Tec社のジュールメーターED-100によって測定した。パルス幅は浜松フォトニクス社のテン

Fig.1 Schematic diagram of the experimental setup including pulswidth measurement, another energy meter being placed behind the slit for energy measurement⁹⁾

ポラルディスペーサーC1370とRCA社のISITカメラを用いて観測し、OMAによって記録した。この時のシステムの時間分解能は5psである。

3. 出力光強度及び変換効率

反ストークス光のエネルギーの測定は H_2 ガス圧20, 40, 60, 80気圧で行なっている。40気圧以上において1次から8次までの反ストークス光が名刺等の面上でリング状の青い蛍光として肉眼で容易に観測される(只し、1次のみは可視光である)。このリング形は各反ストークス光発生の際の位相整合条件によるものである。Fig.2に各次数の反ストークス光のパルスエネルギーの測定結果を示す。図に見られるように、各圧力における反ストークス光のエネルギーは次数が増すにつれて減少する。その減り方は、20気圧の場合だけは極端に大きいが、40気圧以上ではほぼ同様の傾向を示し、隣合う次数の間のエネルギーの比率は0.3~0.7となっている。20気圧の場合の変換効率の悪さは主として H_2

Fig.2 Pulse energies of anti-Stokes lines at various H_2 pressures for the pump pulse at 532nm wavelength with 10mJ energy and 25 ps duration⁹⁾

分子密度が小さいことによると考えられる。40気圧以上の場合を見ると、より低圧の時の方が次数の増加に対するパルスエネルギーの減少の割合が小さくなっている。その結果低次の反ストークス光では圧力が増加するにつれてエネルギーが増加するが、高次光ではその傾向が逆転し圧力が増えるとエネルギーが減少してしまう。これはラマン媒質である H_2 ガスの分散によるものと考えられる。即ち、 n 次の反ストークス光は主として¹⁰⁾

$$k_n = k_p - k_s + k_{n-1}$$

(k_n, k_p, k_s はそれぞれ n 次の反ストークス光、励起光、1次ストークス光の波数ベクトル)で表わされるような4光波混合過程によって発生されるが、圧力が増すと分散が大きくなってこの位相整合条件を満足する反ストークス光の射出角が大きくなり、その結果各光成分の間の相互作用長が短くなってしまふためである。従って最も高次である8次の反ストークス光ではより低圧の40気圧の時に最もエネルギーが大きくなり、10mJの励起光に対して $2\mu J$ の出力が得られている。エネルギーの変換効率としては 2×10^{-4} である。又、この時のパルス幅は後に述べるように10ps程度であるから、ピークパワーは約200kWでありピークパワーの変換効率としては 5×10^{-4} となっている。

Fig. 2に見られるピコ秒励起の反ストークス光のエネルギーの振舞いを励起エネルギーがほぼ似かよったWilke等のナノ秒の実験¹⁾の場合と比べてみると、ピコ秒の場合の1次の反ストークス光のエネルギー変換効率(0.01)がナノ秒の場合(0.1)に比べてかなり小さいことが特徴的である。それに対して、隣合う次数の反ストークス光のエネルギーの比率はナノ秒の場合(0.3)よりも比較的大きい。これは過渡的誘導ラマン散乱に特有な1次ストークスパルスの著しいピーク遅れ(ガウス型パルス波形を仮定すると励起パルスの半値全幅の0.9倍程度の遅れと見積られる)の現象によるものと考えられる。即ち、1次の反ストークスパルスは主と

して1次ストークスパルスと励起パルスとの4光波混合によって発生されるが、1次ストークス光のピーク遅れによって両者のパルスの時間的に最も強い部分同士が重ならないために1次反ストークス光の発生効率が著しく小さくなる。それに対して、 n 次($n \geq 2$)の反ストークス光の発生ではピーク遅れを伴わないので、隣合う次数の反ストークス光のエネルギーの比率はナノ秒の場合に比べて小さくなることはなく、むしろピーク強度の高さを反映して大きくなっていると考えられる。結局、1次反ストークス光の変換効率が低いにもかかわらず、高次の反ストークス光ではWilke等のナノ秒の場合と同程度か或いはむしろ高いエネルギー変換効率となっている(彼等の実験では励起エネルギーが我々よりも4倍も大きい)。

4. パルス幅

ピコ秒の反ストークス光の時間的振舞いの観測に関して注意すべきことは、円錐状に射出されたビームをレンズで平行光になおす際にあまりビーム径を大きくしてはならないことである。大き過ぎると分散プリズムの中を通る長さがビームの断面の各部分によって大きく異なり、各部分にパルス幅に比べて無視できない遅延の差が生じてしまう。従って、実際にピコ秒紫外光源として用いる時は、各次数の反ストークス光を分ける際にできれば分散プリズムでなくフィルター等を用いる方が望ましい。

Fig. 3 Typical temporal profiles of anti-Stokes pulses⁹⁾.

Fig. 4 Ratios of the anti-Stokes pulsewidth, t_{AS} , to the pump pulsewidth, t_p , as functions of H_2 pressure (a) and of anti-Stokes order (b)⁹⁾.

Fig. 3 に高次の反ストークス光のパルス波形の例を励起パルスと共に示した。又、Fig. 4 に反ストークス光のパルス幅の励起パルス幅に対する比を示した。Fig. 4 では、5 次と 7 次のパルスについての圧力依存性と、一定圧力 (80 気圧) での次数に対する依存性を示してある。どの場合にも反ストークス光のパルス幅はほぼ 10 ps 程度であり、励起パルス幅に対する比は 0.5 前後である。次数に対する依存性や圧力依存性はこの測定誤差の範囲では特に見られない。

1 次のストークス光のパルス幅及び励起パルス幅に対する比もほぼこれと同じ程度であり、反ストークス光のパルス幅はほとんど 1 次ストークス光の幅で決まっているといつてよい。これに対し、ナノ秒の場合は次数が大きくなる程比較的顕著にパルス幅が縮まっている。過渡的誘導ラマン過程では励起光と 1 次ストークス光とによって励起された分子振動のコヒーレンスの持続時間がパルス幅に比べて非常に長い。それ故、そのコヒーレンスと $n-1$ 次の反ストークス光との結合によって生ずる n 次の反ストークス光のパルス幅は $n-1$ 次のものとはほぼ同じになる。従って、過渡的誘導ラマン過程では次数によって大きくパルス幅が変わることはないとい

える。同様の理由によって 1 次の反ストークス光のパルス幅はほぼ 1 次ストークス光と同じ程度になると考えられるので、実験結果は定性的によく理解できる。

5. おわりに

以上のように誘導ラマン散乱によって波長 200 nm 前後のピコ秒のコヒーレント紫外光を容易にかつ比較的高い効率で得ることができた。変換効率に関して言えば、例えば、励起パルスと時間的にピークを合わせて 1 次ストークス光を外部から入力してやるようなことを行なえば、更に非常に大きな効率を得ることが期待される。ナノ秒の領域では最近色素レーザー励起によって 13 次 (138 nm) までの反ストークス光を得ており⁴⁾、ピコ秒領域においても今後誘導ラマン散乱によって同程度の波長の真空紫外光パルスを得ることは可能であろうと考える。

参考文献

- 1) V. Wilke and W. Schmidt: Appl. Phys. **16** (1978) 151.
- 2) V. Wilke and W. Schmidt: Appl. Phys. **18** (1979) 177.
- 3) T. R. Loree, R. C. Sze, D. L. Barker and P. B. Scott: IEEE J. QE-**15** (1979) 337.
- 4) H. Schomburg, H. F. Döbele and B. Rückle: Appl. Phys. **B30** (1983) 131.
- 5) A. D. May, V. Degen, J. C. Stryland and H. L. Welsh: Can. J. Phys. **39** (1961) 1769.
- 6) See e.g. D. H. Auston: In *Ultrashort Light Pulses*, ed. by S. L. Shapiro (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York 1977) pp. 140-153, and references therein.
- 7) R. L. Carman, F. Shimizu, C. S. Wang and N. Bloembergen: Phys. Rev. **A2** (1970) 60.
- 8) R. L. Carman and M. E. Mack: Phys. Rev. **A5** (1972) 341.
- 9) N. Morita, L. H. Lin and T. Yajima: Appl. Phys. **B31** (1983) 63.
- 10) R. Chiao and B. P. Stoicheff: Phys. Rev. Lett. **12** (1964) 290.