レーザーオリジナル

同期励起近赤外色素レーザーの発振

北 嶋 巖*・尾崎行雄*・瀧 吞 明*
岡井善四郎*・岩澤 宏*

(1990年8月16日 受理)

Operation of a Synchronously Pumped Infrared Dye Laser

Iwao KITAZIMA*, Ikuo OZAKI*, Akira TAKINOMI*,
Zenshiro OKAI* and Hiroshi IWASAWA*

(Received August 16, 1990)

Ultra-short infrared pulses were generated from a DNP 1040 dye laser synchronously pumped by a CPM glass laser newly constructed. Short (3-4 ps) pulses of about 100 per shot were obtained from the glass laser, in which a saturable absorber (NDL 112) of 0.5 mm in thickness was set in the center of a linear cavity of 1.0 m in length and a glass rod (LHG-8.5^φ, 75^ℓ) was placed between the cell and a coupling mirror. These glass laser pulses pumped synchronously the dye laser, the dye cell of which was contacted with the rear mirror and the cavity length was adjusted to be a half of the pump laser. The pulse width of the infrared dye laser of weak intensity was measured by an optical Kerr shutter method with a CS₂ cell and the glass laser. The pulse width of a transmitted signal was 3.0 ps including the response time of the Kerr shutter and the gate pulse width in convolution. The attainable pulse width of this dye laser is estimated to be about 1.0 ps or less for the Gaussian pulse profile by deconvolution.

Key Words: CPM glass laser, DNP 1040, Near IR dye laser, Synchronously pumped M. L., Optical Kerr shutter.

1. はじめに

光ファイバーの低損失域である近赤外域で発振する半導体レーザーやカラーセンターレーザーなどの研究、開発の進展は近年著しいものである^{1,2)}。一方、ガラスレーザー、YAGレーザーのモード同期用可飽和吸収色素などを活性媒質として用いた近赤外色素レーザーの研究も早くから行われ、ここ10年来幾つかのグループ

によってモード同期発振が進められてきた。

古くは1968年にソ連のグループ³⁾によってガラスレーザーを励起光源として、ポリメチン(polymethine)系色素を用いた近赤外色素レーザーの発振が行われている。その後、1978年に繰返し動作の改善を目的として、QスイッチYAGレーザーを励起光源としてポリメチン系色素 DNP1040 (DNXTPC-perchlorate) による 1.2 μm 近くの発振が我が国で報告された⁴⁾。

*福井大学工学部電子工学科(〒910 福井市文京3丁目9-1)

*Department of Electronics, Faculty of Engineering, Fukui University (9-1 Bunkyo 3, Fukui City, 910)

Table I Characteristics of near-infrared dye lasers.

Laser dye	Wavelength	Laser output	Pump laser	Ref.
DNP 1040	1.08~1.12 μm	10 ps, 5 pulses	Pulsed YAG, 25 ps, 10 pulses	5)
No.26	1.15~1.24	5.5 ps, 5	21 ps, 8	6)
		3 ps, (300 fs)	CW YAG, 100 ps, (5ps)	7, 8)
No.5	1.18~1.53	27ps, 5	Pulsed YAG, 35 ps, 12	9)
	1.21~1.34	600 fs	CW YAG, 2 ps	11)
No.9860	1.08~1.36	9 ps	Pulsed YAG, 35 ps, 12	10)

その後1979年に A.Ferrario⁵⁾ はパルス発振のモード同期YAGレーザーを用いてこの色素の同期励起モード同期発振を初めて報告している。その後、パルス発振及びCW発振のモード同期YAGレーザーを励起光源として、Table I でみるような幾つかの色素について、モード同期発振が報告されている⁵⁻¹¹⁾。1981年には W. Kranitzky ら⁶⁾ によって光化学安定性の優れたピリリウム (pyrylium) 系色素の Kodak No26 を用いて発振波長 1.15~1.24 μm 、パルス幅 5.5ps のレーザーパルス列が得られている。1986年に P.Beaud⁷⁾ は CW YAG レーザーのパルス幅を 5ps と圧縮して励起光源とし、この No26 で 300fs の色素レーザーパルス幅を得ている。1987年には H.Lobentanzer⁹⁾ はリング型共振器を構成し Kodak No5 を用いて、より長波長側 (1.18~1.53 μm) でパルス幅 27ps のパルス列を得ている。彼らは又、1989年に No9860 (1.08~1.36 μm) で 9ps のパルス幅を得た¹⁰⁾。

ところで我々の研究室では、かなり以前よりガラスレーザーを用いて、Si の誘導ラマン散乱や非線形吸収などの非線形光学実験を行ってきた^{12,13)}。Si のエネルギーギャップ (1.1eV, 300°K) がガラスレーザーの光子エネルギー (1.18eV) に非常に近いことが注目される特徴であり、Si の温度を変えれば、レーザー光に対する吸収係数を大きく変えることができる。それ故、ガラスレーザーパルスにより一光子間接遷移で伝導帯を高密度に励起した後、近赤外レーザーパルスで、自由キャリアの挙動をプローブすることができる。このポンプ・プロー

ブ法を行うために、モード同期ガラスレーザーで同期励起した近赤外色素レーザーのモード同期発振を試みた。色素レーザーパルスは同期励起法においてパルスの先端部が利得を受けることから¹⁴⁾、励起光源のパルス幅が狭く、尖頭出力が大きく、かつ励起回数が多いほど、そのパルス幅が狭められる。我々は励起光源として、尖頭出力の高いガラスレーザーを衝突パルスモード同期 (CPM; Colliding Pulse Mode-lock) 発振させ、そのパルス幅とパルス本数を改善した上で、共振器構成を工夫した同期励起近赤外色素レーザーの発振を試みた。

2. 近赤外色素レーザーの特徴

近赤外域で発光するポリメチン色素はメチン連鎖 ($-\text{CH}=\text{CH}-$) を継ぎ足して、分子の吸収及び蛍光スペクトルを長波長側に移動させたものであり、分子の化学的安定性は小さく、その長波長側限界は高々 1.2 μm 程度である。それ故分子量が大きいことから発光の量子効率 η は 0.1 程度と小さい。因みに可視域で用いられるシアニン (cyanine) 色素のそれは、ほぼ 1 に近い。第一励起一重項状態 S_1 の自然寿命 τ は $10^{-9} \sim 10^{-8} \text{sec}$ であるので、近赤外色素の蛍光寿命 τ_f は $10^{-10} \sim 10^{-9} \text{sec}$ 以下となる。近年開発されたピリリウム系色素は光化学安定性が格段と改善されたが、蛍光寿命 τ_f は 3~40ps と短く、量子効率 η は $10^{-3} \sim 10^{-4}$ と非常に小さい。そこで、励起光としては可視域色素レーザーに比べてパルス幅が狭く、尖頭出力の大きなパルス列が必要となる。更に蛍光寿命が短いことから共

振器の長さ及び構成に可視域色素レーザーと異なった工夫が要求される。

同期励起モード同期の一般的原理として、色素レーザーの共振器長を励起レーザーの共振器長に合わせることににより、励起レーザーパルスに同調して色素レーザーパルスを利得変調させ尖頭出力の増大とパルス幅の圧縮を行うことができる¹⁴⁾。ところで、色素レーザーの共振器構成については後程述べるが、ファブリ・ペロー (Fabry・Perot) 型にした場合、色素セルが共振器の丁度中央にないときは色素の蛍光寿命 τ_f が共振器内を1周回する時間 (round trip time) より長い場合 (可視域色素に対応) と短い場合 (近赤外色素) とでは、共振器中を互いに反対方向に走行する2つのパルスの利得選択効果が異なってくる。即ち可視域色素レーザーでは蛍光寿命が長いので、色素セルより出て互いに反対方向に走行するパルスの内より早く色素セルに戻ってくるパルスが再度利得を受け成長できるのに対し、遅れてくる他方のパルスは利得を受けられないことになるから、結局共振器中には1つのパルスのみが成長できることになる。これに対して近赤外色素レーザーの場合は、蛍光寿命が短いのでいずれのパルスも、再び色素セルに戻ってきても再度利得を受けることはできないので、共振器構成を工夫しないと励起レーザーパルスに同調して2つのパルスが同じように利得変調を受け成長して出力されることになる。

3. 実験方法

前述したように近赤外色素の蛍光寿命は非常に短く、又発光量子効率も非常に小さい。そのため、同期励起の光源としてパルス幅がその蛍光寿命より狭く尖頭出力の大きなことが必要である。ここで受動モード同期固体レーザーはその要請をほぼ充てくれるものと言える。当然のことながら、従来から繰返し動作の良いモード同期YAGレーザーがその励起光源として用いられてきている。しかしながら、Table I でみるようにモード同期YAGレーザーのパル

ス幅はパルス発振でも20~40psと広く、パルス本数は10本程度と少ない。またそのCWモード同期レーザーはパルス幅短縮の面では同期励起の光源として非常に優れているが、尖頭出力の小さいことは、それで励起される色素レーザーの出力は更に小さくなるので非線形光学実験には不十分である。またYAGロッドはガラスロッドに比較して格段に高価である。そこで我々は安定性においては劣るが、パルス幅が狭く、尖頭出力の大きいモード同期ガラスレーザーを励起光源として用いることとした。ガラスレーザーを励起光源とすれば1ショットのパルス発振で、およそ30~50本の数ピコ秒幅のパルス列が受動モード同期により容易に得られる。更に、我々は数年前よりその可飽和吸収色素セルを共振器の光学的中心に設置して、CPM発振を行い、パルス幅を半分に短縮し、パルス本数を2倍にすることを実現している¹⁵⁾。この改良されたモード同期ガラスレーザーを励起光源として用いて、近赤外色素レーザーのモード同期発振を行った。

4. 実験と結果

4.1 励起光源としてのCPMガラスレーザー

CPM発振は1981年にリング型共振器の色素レーザーでR.L.Forkら¹⁶⁾により初めて実現されたものである。これをガラスレーザーに適用するため、長さ約1.0mのファブリ・ペロー型共振器の中央に0.5mm厚の可飽和吸収色素 (NDL 112) セルをブリュスター (Brewster) 角で設置し、その出力鏡側にはブリュスターカットのガラスロッド (Hoya LHG-8, 5mm ϕ × 75mm ℓ) を挿入した。共振器中にはTEM₀₀ モードで発振させるため3.8mm ϕ のピンホールを挿入している。Fig.1にはCPMガラスレーザー系とそのパルス幅測定用のTPF (2光子蛍光) パターン観測系を示す。立ち上がり時間0.5nsのバイプラナー光電管を用いてモード同期のかかり具合をモニターした。

可飽和吸収色素セルは共振器内を対向する2

Fig.1 Experimental setup of a CPM glass laser and a TPF measurement.

Fig.2 Histogram of the pulse width with the relative cell position.

つのパルスをセル内で衝突させるため、共振器の光学的中心に精確に設置する必要がある。そこでセル位置を1mm ずつ移動させて、TPF法でパルス幅を測定し、最適位置を決定した。

Fig.2はセル位置によるパルス幅の度数分布の変化であり、Fig.3はその平均値のセル位置

Fig.3 Dependence of the average pulse width on the cell position; results obtained from Fig.2.

による変化をそれぞれ示している。Rh-6G 色素を用いたTPFパターンのフィルムをマイクロフォトデンストメーター(JMD-1A)でトレースし、パターンの黒化度がフィルムのH-D (Huter-Drifield) 曲線の線形領域にあるもので、コントラスト比2以上3以下のものをデータとして採用した^{17,18)}。ここでは、方形波を仮定

Fig.4 Experimental setup of an infrared dye laser synchronously pumped with a CPM glass laser.

して測定値をそのままパルス幅として用いた。この実験では、Fig.3でみるようにセル位置 4mm の所で $3\sim 4\text{ps}$ のパルスが数多く発生し、その平均値も最小の 4.1ps であったので、ここを略々最適位置即ち光学的中心とした。この時の最短パルス幅は 2.2ps であった。ここで、もしパルス波形にガウス関数を当てはめれば、平均パルス幅は 2.9ps となり、度数分布でみる最小パルス幅は 1.6ps となる。又、ショット毎のパルス本数は約 100 本であった。尚、NDL112 の濃度については $5.5 \times 10^{-6} \text{ mol/l}$ がパルス幅とモード同期の安定性の面から最適であった。

4.2 近赤外色素レーザーの発振

Fig.4 は、同期励起近赤外色素レーザーの構成図である。CPMガラスレーザー(平均パルス幅 2.9ps , パルス間隔 3.3ns , パルス本数約 100 本, ショット間隔 20sec)のビームを反射鏡で 1 部 (75%) 分離し、色素レーザーの励起光(約 700MW)として、 0.6mm 厚の色素セルに斜め方向からレンズ($f=50\text{cm}$)でゆるく集光して照射した。前述したように近赤外色素の発光寿命が短いことから、共振器内の周回パルスは 2 本になる恐れがあるので、これを 1 本にするため、我々は色素セルを反射鏡($R=100\%$)に密着させた。同期励起を有効に行うためには、色素レーザーの周回パルスが再度色素セル中を通過するときに確実に利得変調が受けられるようにする必要がある。即ち色素レーザーパルス間隔を励

Fig.5 Output peak intensity vs. the cavity length displacement (ΔL). The dye concentration of DNP-1040 in DMSO is 3.2 g/l .

起レーザーパルス間隔に合わせる必要がある。ので、色素レーザーの共振器長をガラスレーザー共振器長の半分の 50cm とし、その微調整(ガラスレーザー共振器長との整合)は色素レーザーの出力鏡をトランスレーターで微動することにより行った。共振器内のレンズ($f=40\text{cm}$)はレーザー発振の閾値(threshold)を下げるためのものである。近赤外色素としては発振波長領域 $1.08\sim 1.12\ \mu\text{m}$ のDNP-1040色素(分子量 805.5g)のDMSO溶液(4.6g/l)を使用した。この色素溶液は常温では約 6 時間で退色してしまい、蛍光強度が低下するので、暗所に冷凍保存し、実験毎に新しい色素溶液と交換した。又、室温が 18°C 以下ではDMSO溶液は凝固してしまうので、ヒーターを用いて保温した。

Fig.5 は近赤外色素レーザーの共振器長 L を微調整したときのレーザー出力強度の変化を示す。横軸は整合長からのずれ(ΔL)を示しており、 $+$ は整合長より長いこと、 $-$ は短いことを表している。出力強度は $\Delta L < 0$ ではゆっくり変化し -1.2mm まで裾が伸びているが、 $\Delta L > 0$ では $+0.4\text{mm}$ までに急激に減少している。このことは同期励起での利得変調が色素レーザーパルスの前端部で有効に働いていることから容易に説明される。整合長より大きくはずれた背景雑音を除いた半値幅は時間に直して約 1.2ps

である。

4.3 光カーシャッター法によるパルス幅測定

近赤外色素レーザーの出力は非常に弱いので、Rh-6G を用いても TPF パターンの観測は不可能であった。それ故、ここでは差し当り CS₂ セルを用いた光カーシャッター法によってパルス幅を測定した^{19,20)}。

光カーシャッター法は互いに直交する偏光子と検光子の間に 2 次の電気光学効果即ちカー効果を起こす誘電媒質を挿入しておき、そこに強い超短光パルスをゲート光として入射させると、偏光子で規定された偏光面をもつ被測定光にも検光子を通過できる偏光成分が生じることを利用したものである。ところで、被測定光のパルス幅がゲート光パルス幅やカー媒質の緩和時間と同程度か短くなると、それらの時間幅のコンボリューション(convolution)としてシャッター透過光のパルス幅が観測される。そのため、予め被測定光のパルス幅を仮定し、それとゲート光のコンボリューションを考え、透過光としての光カー信号強度を計算しておく必要がある²⁰⁾。

ここでは、被測定光、ゲート光ともに次のようにガウス波形を仮定している。

$$I_s(t) = \exp[-4\ln(2)(t/\Delta t_s)^2] \quad (1)$$

$$I_p(t) = \exp[-4\ln(2)(t/\Delta t_p)^2] \quad (2)$$

但し、 Δt_s 、 Δt_p はそれぞれ、被測定光、ゲート光のパルス幅(FWHM)である。このときの透過光強度 $T(t')$ は

$$T(t') \sim \int_{-\infty}^{+\infty} I_s(t-t') \sin^2(\phi(t)/2) dt \quad (3)$$

で表される。但し、 $\phi(t)$ は

$$\phi(t) \sim (1/\tau) \int_{-\infty}^t I_p(t'') \exp[-(t-t'')/\tau] dt'' \quad (4)$$

で与えられ、 τ は CS₂ の緩和時間 2.1ps であり、

Fig.6 Relation between the real pulse width of a dye laser and the transmitted pulse width through an optical Kerr shutter.

Fig.7 Optical Kerr signal intensity vs. the delay time of a gate pulse for $\Delta L = 0$.

Δt_p はゲート光のパルス幅つまり CPM ガラスレーザー光の平均パルス幅 2.9ps である。これを基にして実測されたパルス幅より、被測定光つまり色素レーザーのパルス幅を逆算することを行った。実測パルス幅に対する推定パルス幅の関係を Fig.6 に示す。この計算の詳細については別に報告する²¹⁾。

Fig.7は色素レーザー共振器が整合長($\Delta L = 0$)のとき、ゲート光の遅延時間に対してサンプリングされた透過光パルス波形である。破線で示した背景雑音を除去すると透過光の半値幅は3.0psと求められた。この値をFig.6を用いて逆算すれば、被測定光の色素レーザーパルス幅はおおよそ1.7psとなる。我々の色素レーザーからは1ピコ秒台のパルスが出力されていると推定される。共振器長が整合長よりはずれるにつれ、パルス幅は急速に広がった²¹⁾。

5. 検討・考察

1) 励起光源について

ガラスレーザーのパルス幅はTPF法で測定したが、Fig.2, 3にはパルス波形を方形波としてパターントレースしたパルス幅をそのままデータ整理した。前述したように、パルス波形にガウス関数を当てはめれば、平均パルス幅は2.9psであり、度数分布でみる最小パルス幅は1.6psとなる。この値は発振スペクトル幅30Åから逆算されるパルス幅1.1psにかなり近いものである。なおFig.2, 3でみるように、可飽和吸収セル(0.5mm厚)が、共振器の光学的中心よりはずれるとパルス幅は広がっていくが、その変化は急激ではない。これは3~4ps幅のパルスがセル内で重なっていることから当然考えられることである。また、密着型セルに比べて色素濃度を高くできるので、いずれのパルスも透過回数が多いことからパルス短縮をより有効に受けていると考えられる。

2) 色素レーザー共振器について

共振器内の周回パルスを1本にするために、現在までに幾つかの共振器構成が試みられている⁸⁾。先づリング型共振器によって対向する周回パルスを分離するものである。この場合はファラデー回転素子などを挿入して周回パルスの進行方向を決めてしまう方法も考えられる。次に複合共振器を構成する方法である。即ち、ファブリ・ペロー共振器の一方の端に反共振リング(anti-resonant ring)を結合し、そのリングの中心に色素セルを設置する方法である。第3

に、基本的には線形共振器内で立つ2つのパルス的一方が色素セルを通過する時に、タイミングを合わせて必ず励起パルスが入射するように励起パルス間隔に時間変化を与える方法である。しかし、前2つの方法は素子数が多く共振器調整が難しく、第3の方法では励起パルス間隔に時間変化を与える面倒さがある。そこで、我々は素子数も少なく、共振器調整も簡単なFig.4のような構成を考えた。この色素セルを反射鏡に密着させたファブリ・ペロー型共振器では周回パルスは必然的に1本しか形成されず、共振器長を励起パルス間隔に整合させておけば、色素レーザーパルスは再び色素セルを通過するときには必ず励起パルスにより利得変調を受けることになる。この新しい方法は素子数が少なくQ値が高く、軸合わせも容易な利点があると考えている。

3) パルス幅について

光カーシャッター法を用いて色素レーザーパルス幅を測定したが、このときゲート光であるガラスレーザーのパルス幅はガウス波形としての平均値2.9psをデコンボリューション(deconvolution)の計算に用いた。透過光波形の3.0ps幅より計算される色素レーザーの平均パルス幅は1.7psとなる。レーザーパルス波形にいずれの関数を適用するかにより、計算されるパルス幅は多少異なってくるが、本実験では略々1ps台のパルスが得られていると考えられる。ところで、ガラスレーザーの調整は難しく、色素レーザーの共振器長整合の別の実験で、我々はFig.5の半分の半値幅(0.6ps)を得ている。この値から推定すれば、色素レーザーのパルス幅は1.0ps以下になると考えられる²¹⁾。以上のことよりTable Iでみるように、パルス本数が少なく、パルス幅の広いパルス発振モード同期YAGレーザーを励起光源として用いたものより、我々のCPMガラスレーザーを用いた方がかなりパルス幅短縮には有効であると考えられる。

6. あとがき

我々は可視域の Rh-6G 色素レーザーの同期励起発振を従来型のモード同期ガラスレーザーのSHG光で行った場合と、このCPMガラスレーザーのSHG光で行った場合を比較している。後者では、色素レーザーのパルス幅は従来型の2分の1に短縮されることを確かめている。ところで近赤外色素は緩和時間が短いことから、既に述べたように、短く強い励起パルスにより、より有効に利得変調を行うことができ、パルス幅短縮が行われると考えられる。因みに Table I のように、従前からのパルス発振YAGレーザーを用いた場合、近赤外色素レーザーのパルス幅は高々数psでしかないことを考えれば、やはり我々のCPMガラスレーザーは同期励起近赤外色素レーザーの励起光源として大いに有効なものであると判断される。

今後ブリズムを使った波長選択発振を試みると共に、パルス幅の決定にはSHG相関法²²⁾やSiのCARS測定²³⁾なども併用して精確を期していきたい。

謝辞

本研究を遂行するに当り、当研究室の学生であった、塩見剛、山本聡、田中、宮腰、織田、西野、兵庫、三原、小川、小林、中西、西田、小嶋、白崎、田中君らの協力を得たことを記して謝意を表す。尚、この実験は、大阪大学レーザー核融合センターとの「共同研究」補助を受けて現在も進められていることを記しておく。

参考文献

- 1) S. Arai, Y. Suematsu, and Y. Itaya: IEEE J. Quant. Electron. **16** (1980) 197.
- 2) W. Gellermann, F. Luthy and C. R. Pollak: Opt. Comm. **39** (1981) 391.
- 3) L. D. Derkocheva, A. I. Krymova, V. I. Malyshev, and A. S. Markin: JETP Lett. **7** (1968) 362.
- 4) K. Kato: IEEE J. Quant. Electron. **QE-14** (1978) 7.
- 5) A. Ferrario: Opt. Comm. **30** (1979) 85.
- 6) W. Kranitzky, B. Kopainsky, W. Kaiser, K. H. Drexhage, and G. A. Reynolds: Opt. Comm. **36** (1981) 149.
- 7) P. Beaud, B. Zysset, A. P. Schwarzenbach and H. P. Weber: Opt. Lett. **11** (1986) 24.
- 8) H. Roskos, S. Optiz, A. Seilmier and W. Kaiser: IEEE J. Quant. Electron. **QE-22** (1986) 697.
- 9) H. Lobentanzer and H.-J. Polland: Opt. Comm. **62** (1987) 35.
- 10) H. Lobentanzer: Opt. Comm. **71** (1989) 175.
- 11) F. S. Choa, Y. Liu, and P. L. Liu: Opt. Lett. **14** (1989) 222.
- 12) I. Kitazima and H. Iwasawa: Opt. Comm. **5** (1972) 18.
- 13) 北島, 尾崎, 岩沢: 電子通信学会研究会資料 **OQE88-54** (1988) 17-22.
- 14) D. M. Kim, J. Kuhl, R. Lambrich and D. von der Linde: Opt. Comm. **27** (1978) 123.
- 15) 北島, 進士, 岩沢: 第47回応用物理学会講演予稿集 (1986) 136.
- 16) R. L. Fork, B. I. Greene and C. V. Shank: Appl. Phys. Lett. **38** (1981) 671.
- 17) J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro and K. W. Wecht: Appl. Phys. Lett. **11** (1967) 216.
- 18) 北島, 宮永, 佐藤, 岩沢: 福井大工研報告 **24** (1976) 197.
- 19) M. A. Duguay and J. W. Hansen: Appl. Phys. Lett. **15** (1969) 192.
- 20) E. P. Ippen and C. V. Shank: Appl. Phys. Lett. **26** (1975) 92.
- 21) 北島, 尾崎, 瀧吞, 白崎, 田中, 岡井, 岩沢: 福井大工研報告 (投稿予定).
- 22) 石田, 矢島: レーザー研究 **12** (1984) 272.
- 23) I. Kitazima: unpublished.