レーザーオリジナル

同期励起色素レーザーの偏光特性

北 島 巖*・塩 見 剛**

(1991年 1 月 24 日 受理)

Polarization Properties of a Synchronously Pumped Dye Laser

Iwao KITAZIMA* and Tsuyoshi SHIOMI**

(Received January 24, 1991)

A rhodamine 6G (RH-6G) dye laser was actively mode-locked by synchronous pumping using a frequency-doubled mode-locked Nd^{3+} glass laser. Output light intensities and polarization were measured as a function of the pumping power and dye concentration. Dye laser pulses were observed with a streak camera of 8 ps resolution. The laser pulse width decreased down to the minimum value of 18 ps as the degree of polarization increased up to the maximum value of 0.75. The addition of DODCI as a saturable absorber enhanced the degree of polarization up to 0.9.

Key Words: Dye laser, Synchronous pumping, SHG of M.L. Nd^{3+} glass laser, Pulse width, Polarization.

1. はじめに

色素レーザーのモード同期発振方法の1つである同期励起(シンクロナス・ポンプ)モード同期法は¹⁻⁴⁾, 色素分子発光過程の超高速性を利用した利得変調による超短パルス発生法である⁵⁻⁷⁾。このモード同期発振過程の中での色素分子の発光は、初めは互いの分子は独立な普通の蛍光(自然放出光)から励起が進むにつれて互いに協力し合う誘導放出光となり、更には選択的増幅を受けるレーザーパルス光へと成長することになる。それ故誘導放出により増幅された自然放出光(ASE; Amplified Spontaneous Emission)別称超蛍光(Superfluorescence)は、

当然、発光の形態が普通の蛍光とは異なった特徴をもっている⁸⁻¹²⁾。即ち励起光強度と繰り返し励起回数の増大に伴い、単に色素分子の発光強度が増大するだけではなく、指向性および偏光度の向上、パルス幅の短縮などとして、その発光形態の変化が現れてくる。従ってモード同期色素レーザーパルスの特性改善を進めるためには、色素分子の励起および緩和過程に基づくその発光形態の変化を把握しておくことは肝要なことと考えられる。

現在アルゴンレーザーなどのパルス幅100psのCWモード同期ガスレーザーによって色素分子を繰り返し同期励起し、利得変調により超短光パルスを得ることが行われている¹³⁻¹⁶⁾。ま

*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)

**現在、島津製作所勤務

た、最近では励起光源として数10psパルス幅のCWモード同期Nd³⁺YAGレーザーの第2高調波(SHG光; 0.53 μm)を用いて色素レーザーのモード同期発振が行われている^{17,18)}。この場合励起パルス自身が30~50psと短いこと、励起光強度が前者に比べて大きいことから、利得変調による同期励起色素レーザーパルスの尖頭出力の向上およびパルス幅短縮が容易に行われる。一方同じくNd³⁺イオンを発光中心とする自己モード同期ガラスレーザーはパルス発振でパルス列は短く高々数10本ほどのパルス本数しかないが、その発光スペクトルの広さから数ps以下のパルス幅で発振が可能である。更に、衝突パルスモード同期(CPM)法¹⁹⁾を用いればパルス数、パルス幅ともに大幅に改善できることが我々の実験で分かっている²⁰⁾。そしてそのSHG光でも尖頭値は数100MWと大きいので、ローダミン6G(RH-6G)色素分子などの発光を大きく利得変調できる。更に、その1通過利得(One pass gain)も大きいので共振器にDODCIなどの可飽和吸収体を挿入することによって受動モード同期も併用できて、パルス特性の改善が期待できる^{21,22)}。

ここでは上述したように、誘導放出による増幅に伴う色素発光の形態変化に着目して、RH-6G色素レーザーパルスの特性を調べる。即ち従来あまり調べられていないが⁹⁾、比較的簡単に測定できる偏光特性に着目して励起光強度の増大に伴うレーザー出力強度の変化やパルス幅の短縮について検討する。即ち色素発光の立ち上がりと減衰および偏光特性などの変化は色素分子の一重項励起状態(S₁)における振動緩和、配向緩和および蛍光寿命に依存している¹⁰⁻¹²⁾。特にアルコールのように粘性の小さな溶媒中に色素を溶かした場合、レーザーパルスの増幅に与える利得変調は、前2者の緩和過程の進展する初期の段階で速やかに行われるものと考えられる²³⁻²⁶⁾。ここでは、先づ色素分子濃度、励起光強度などが色素レーザーの出力強度、偏光特性やパルス幅に与える影響を調べる。更にレーザー出力に対する強度選択効果、

パルス幅圧縮効果をもつ可飽和吸収色素DODCIの添加効果についても検討する。

2. 実験方法

受動モード同期ガラスレーザーのSHG光(5320 Å)と、それで励起された可変波長ピコ秒色素レーザー²⁷⁾の組合せは、可視域での測定の簡便性、有利さからコヒーレント反ストークスラマン分光(CARS)などの有効な超短パルス光源となり得る²⁸⁾。それ故最も簡便で効率のよいRH-6G色素のエチルアルコール溶液をレーザー色素として使用し、励起光強度による出力パルスの特性変化即ち出力光強度、パルス波形、パルス幅と偏光度の変化を観測し、それらの相互関係を色素濃度をパラメータとして検討する。またパルス幅短縮に有効な可飽和吸収色素DODCIの濃度を変えてレーザー色素セル内に添加し出力パルスに及ぼす影響についても調べる。

Fig.1に色素レーザー励起系とストリークカメラ(streak camera)による波形観測系及び一對の偏光子P_{||}, P_⊥を用いた偏光度測定系を示す²⁹⁾。レーザー色素を入れた0.5mm厚セルを自己モード同期ガラスレーザー(尖頭出力1GW, パルス幅8ps)のSHG光を用いて励起した。色素レーザーの共振器構成は下方に挿入してあるが、焦点距離50mm長のレンズで集光した励起光をセル面に対してやや斜め方向から入射させた。色素レーザーの共振器長は約50cmで、ガラスレーザーの実質的共振器長の丁度半分の長さである。励起光の偏光面を基準として色素レーザー出力の偏光度Pを定義する。即ち励起光と同じ偏光成分I_{||}とそれに垂直な成分I_⊥により次式で与えられる。

$$P = \frac{I_{||} - I_{\perp}}{I_{||} + I_{\perp}} \quad (1)$$

出力光強度の2つの偏光成分(I_{||}, I_⊥)は2本の光電子増倍管(P.T.)を用いて同時に検知した。出力パルス波形は平行と垂直の偏光面を規定した後、8ps分離能のストリークカメラ(浜松ホト

Fig.1 Setup of the experiment. P.T. : photomultiplier tube, Pin : pin photodiode, P₁- P.C.- P₂ and high voltage pulser constitute a single pulse kick-out polarization separation system, forming a pulse-shape observation section in conjunction with a streak camera. P_{||} - P_⊥ - P.T.- P.T. constitutes a pulse polarization observation section. Inset at the bottom shows a detailed configuration of the dye laser.

ニックス)を用いて直接観測した。

3. 実験結果

Fig. 2に色素レーザー共振器長 l_1 の変化に対する色素レーザーパルス波形及び出力尖頭値の変化を示す。モード同期ガラスレーザーの共振器長の丁度2分の1の長さ l_2 に色素レーザーのそれが整合されたときを $\Delta l (=l_1-l_2)=0$ として、 $+\Delta l$ は整合長より長いずれ、また $-\Delta l$ は短いずれを表している。レーザー出力は5650 Å近くにスペクトルピークをもち、尖頭値は整合時の出力で規格化している。 $+\Delta l$ 側ではやや急激に、 $-\Delta l$ 側ではややゆるやかに減少している。 Δl の変化に対する出力パルス波形の変化を図の上部に示した。整合時ではパルス幅18ps程度の単純パルスであるが、 Δl が大きくなると付帯パルスが現れて全体のパルス幅も広がる。

Fig.2. Dye laser output versus displacement of cavity length from match. Top traces show pulse profile at various displacements.

Fig.3. Pulse profiles of dye laser observed by a streak camera as a function of pump intensity (arbitrary units); top traces for polarization component parallel to pumping beam ($I_{\parallel}$) and bottom for perpendicular ($I_{\perp}$).

Fig.3には、色素セルにRH-6G ($1.0 \times 10^{-3} \text{M}$)を入れたとき、励起光強度の増大に伴う色素レーザーパルス出力波形の変化を示す。平行成分($I_{\parallel}$)垂直成分($I_{\perp}$)とも励起光強度が低いときは100ps程度の広いパルス幅の出力がある。励起光強度を徐々に上げるとレーザー出力強度は上昇すると共にパルス幅は狭くなる。そして平行成分では励起光強度(相対値)が200から300でパルス幅が20ps程度に狭くなり出力強度が大きくなる。しかしそれ以上の励起光強度では、却ってパルス幅も広がり出力尖頭値も落ちてくる。他方垂直成分では出力強度は平行成分に比べて数分の1と小さくパルス幅も広い。励起光強度に対するパルス幅の変化は平行成分の場合と類似しているが、最短パルス幅を与える最適励起光強度は600付近で平行成分のそれに比べてかなり大きくなっている。

Fig.4には、RH-6G色素濃度 $1.0 \times 10^{-3} \text{M}$ において励起光強度の増大に伴う出力の変化を示す。まずFig.4bでは偏光成分 $I_{\parallel}$ と $I_{\perp}$ の強度変化を示し、Fig.4aにはその結果より求められた偏光度Pと、それぞれの成分に対する波形観測より求められたパルス幅の変化を示す。図で分かるように双方の偏光成分とも励起光強度が大きくなると出力光強度が大きくなる。しかし直

Fig.4. Dye laser characteristics as a function of pump intensity; (a) polarization and pulse width and (b) output intensities for two polarizations ($I_{\parallel}$, $I_{\perp}$).

線偏光で励起されているから当然であるが、平行成分の強度 $I_{\parallel}$ は垂直成分 $I_{\perp}$ に比べて急速に立ち上がり、その後双方の強度はやや飽和するような形でゆるやかな増加を示す。それ故、Fig.4aの偏光度Pは初めに急激に大きくなり、最大値0.75となるが、その後は飽和して一定値となる。ここでパルス幅の変化についてみると、偏光度の立ち上がりと共に急速に短縮化し、偏光度が飽和すると却って徐々に広がっている。最短パルス幅を示す励起光強度はFig.3でみたように平行成分の方が小さい。そのパルス幅は垂直成分の方がやや狭くなっている。以上のように偏光度とパルス幅の間には密接な関係があることが分かる。

Fig.5には励起光強度に対する偏光度の変化をRH-6G色素濃度($0.2 \sim 10.0 \times 10^{-3} \text{M}$)をパラ

Fig. 5. Dye laser polarization vs. pump intensity with parameter of RH-6G concentration.

Fig. 6. Dye laser characteristics depending on RH-6G concentration; (a) polarization and (b) output intensity with parameter of pump intensity.

メータとして求めた結果を示す。色素濃度 $1.0, 2.0 (\times 10^{-3} \text{M})$ では励起光強度の増大に伴い偏光度の急激な立ち上がりを示し、 $P=0.75$

Fig. 7. Polarization dependence of dye laser spectrum at RH-6G concentration of $1.0 \times 10^{-3} \text{M}$.

程度まで達した後、更に励起を強くすると $P=0.6$ まで低下している。低濃度の $0.2 \times 10^{-3} \text{M}$ と高濃度の $10.0 \times 10^{-3} \text{M}$ では共に、平行成分の出力強度 $I_{\parallel}$ の立ち上がりもみられず偏光度も $P=0.15$ 程度までしか上がらなかった。このように、励起光強度による偏光度の立ち上がりは色素濃度によって大きく左右される。別の実験で調べたことであるが、ASEにおいては偏光度の立ち上がりを示していない濃度 $0.5 \times 10^{-3} \text{M}$ においても、レーザー発振では共振器構成により利得が十分得られることになり偏光度が改善されていることが分かった³⁰⁾。

Fig. 6には、それぞれRH-6G色素濃度の変化に対する偏光度と出力光強度の変化を励起光強度をパラメータとして示した。Fig. 6bのように出力光強度からみると最適濃度は $2.0 \times 10^{-3} \text{M}$ であるが、Fig. 6aでみるように励起光強度の大きいときは $1.0 \times 10^{-3} \text{M}$ の方が偏光度の大きなことが分かる。ここで、注目すべきことは偏光度の最大値は励起光強度300で $P=0.75$ となり、それ以上励起光強度を大きくすると偏光度の最大値は却って小さくなることである。

Fig. 7にはRH-6G色素濃度 $1.0 \times 10^{-3} \text{M}$ におけるレーザー出力の平行成分と垂直成分の発振スペクトルを規格化して示している。後者の偏光

Fig.8. Polarization versus pump intensity at RH-6G: $1.0 \times 10^{-3} \text{M}$ with parameter of added DODCI concentration.

成分のスペクトルは前者に比べて20Å程度長波長側にある。

Fig.8には、RH-6G色素の $1.0 \times 10^{-3} \text{M}$ アルコール溶液にDODCIを添加したときの偏光度の励起光強度依存性を示す。DODCIの添加により偏光度の最大値が大きくなっており、飽和後の落ち込みもRH-6Gのみの場合に比べて緩やかになっている。DODCI添加量が多くなるにつれ偏光度が最大となる励起光強度は大きくなる。添加量が20%では吸収損失が大きく、なかなか立ち上がらないが、励起光強度の大きいところで $P=0.9$ と大きな値が得られている。

4. 検討・考察

1) 共振器長整合

Fig.2でみるように、数mm精度の Δl に対するパルス波形の変化は、同じく受動モード同期のガラスレーザーやYAGレーザーを用いたRoytら³⁾やGoldbergら⁴⁾の実験結果とよく合致している。しかし、CWモード同期レーザーを励起光として用いた場合は、これとは対照的に励起パルスの時間的変動が小さく、繰り返し数が非常に多いことから Δl の精度は数 μm と狭くなり、出力パルスは1ps以下に短くなる^{13,16)}。この差異はレーザー光強度の大きいときに現れる屈折率的非線形性、特にチャープングによるパルス幅拡大効果が効いてガラスレーザーのパル

ス幅が広がり、利得変調の同期がゆるくなるからと考えられる。

2) 励起光強度依存性

励起光強度の増大に伴う色素レーザーパルス幅の変化の原因としては、同期励起の利得変調によるパルス幅短縮と、色素分子 S_1 準位内の利得飽和によるパルス幅の広がりが考えられる。即ち、レーザー発振閾値付近の低い励起の場合は、励起パルスの立ち上がりには追従して利得変調が十分行われパルス幅短縮が進むが、励起パルスが強くなりすぎるとその後端部でも利得を与えることになる。また、誘導放出による S_1 準位の枯渇も十分行われなくなり色素レーザーパルスの後端部でも利得が生じることになるので、パルス幅は却って広がることになる。

ここで平行偏光成分と垂直成分の間におけるパルス幅短縮と飽和の推移の差異は、反転分布形成機構に基づくもので、平行方向の双極子をもつ励起色素分子の分布密度は励起光の吸収によって直接形成されるのに対して、垂直方向の双極子をもつ励起分子の分布密度は平行配向分子の分布形成後に生じる配向緩和によって2次的に形成されることによる。それ故平行偏光成分の利得変調は容易に行われるが、垂直成分の閾値は平行成分に比べて高くなる。

以上のように励起光強度の増大に伴う偏光度の立ち上がりは励起分子の配向とその緩和に基づくもので、当然のことながら励起光の偏光面に平行な励起分子の配向から平行偏光成分の利得が最初に大きくなることに起因している。しかし励起が強くなりすぎて未励起分子が少なくなり利得飽和が生じると平行偏光成分の立ち上がりが鈍化し、一方振動緩和と併行する配向緩和による垂直偏光成分の利得が大きくなり、偏光度 P が低下してくる。また、色素濃度 $1.0 \times 10^{-3} \text{M}$ でレーザー発振における偏光度の最大値($P=0.75$)がASEの場合のそれ(0.85)に比べて小さくなっているのは、共振器構成によって垂直偏光成分も結局利得を得ることになり、平行成分の利得飽和と相まって、偏光度の低下をもたらすものと考えられる³⁰⁾。

3) RH-6G濃度依存性

レーザー発振においては共振器を構成しているためレーザー光は活性媒質内を多数回通過する増幅過程となる。従って1通過のASEに比べて広範囲の濃度で利得が生じるようになる³⁰⁾。従って低濃度の $0.5 \times 10^{-3} \text{M}$ でも出力光強度が大きくなり偏光度の立ち上がりが見られる。又高濃度の $2.0 \times 10^{-3} \text{M}$ においても偏光度の最大値が大きくなっていることも同じく多数回増幅の効果である。この場合は発光中心が多いことから平行偏光成分の利得飽和はしにくくなり偏光度が改善されたものと考えられる。しかしあまり高濃度($5.0 \times 10^{-3} \text{M}$)になると分子間相互作用即ち濃度消光や2量体の形成により発光効率も落ち偏光度も落ちてしまう。

4) 発振スペクトルの偏光依存性

レーザー出力光スペクトルの偏光成分による相異は誘導放出過程の始準位の違いによるものと考えられる。即ち平行偏光成分は励起直後の S_1 準位内振動回転緩和の初期状態から輻射遷移するのに対して、垂直偏光成分は平行配向分子の回転緩和の進んだ振動準位の底の方から輻射するので、垂直成分のスペクトルは平行成分に比べて長波長側へ移行する。従って同一レーザーパルス内において平行と垂直成分とは時間差があり、 S_1 準位内での振動緩和時間を直接与える。RH-6Gの S_1 準位内振動緩和時間は1ps以下と報告されており²⁵⁾、今回の測定ではストリークカメラの時間分解能が低いことから、この時間差は測定できなかった。

5) DODCIの添加効果

可飽和吸収色素DODCIの添加により偏光特性の改善が見られた。Fig. 8でみたようにDODCIを添加したときは偏光度が最大になる励起光強度の範囲が大きく広く緩やかになっている。これはDODCIがRH-6G発光の平行偏光成分の強度が大きいため選択的に透過し、他方垂直成分の強度はそれより小さいので吸収損失を受け易く増幅が抑えられているためと考えられる。DODCIの添加量の増加と共に偏光度の改善が図られたが、出力光強度を考慮すると添加

量は10%程度が適当と考えられる。

5. あとがき

- 1) レーザー出力と偏光度からみて、RH-6G色素濃度と励起光強度に最適値が存在することが分かった。
- 2) 偏光度の上昇に伴いパルス幅が短縮されていることも分かった。
- 3) このことはモード同期パルスの特性が偏光度測定により推察できることを示している。

以上のことから励起光強度をあまり大きくしすぎても効果はなく、余分の励起エネルギーは色素レーザーの増幅段励起などへ充当させ得るということにもなる。RH-6Gのアルコール溶液を用いた場合、レーザー色素の最適濃度はレーザー発振では $2.0 \times 10^{-3} \text{M}$ となり、ASEの $0.8 \times 10^{-3} \text{M}$ より高い濃度になっている³⁰⁾。本実験のように、ガラスレーザーのSHG光で利得変調した場合でも、可飽和吸収体を挿入した受動モード同期を併用すれば偏光特性が改善され、パルス幅短縮が促進されると推察される。この点に関しては、2光子蛍光(TPF)法や光カーシャッター法などによるパルス幅測定が必要と考えている²⁰⁾。

謝辞

本実験を遂行するにあたり、ピコ秒パルスの波形観測にはレーザー分光室(本学工学部)設置のテンポラルフォトメータシステムを使用した。この場を借りて、岩澤宏教授をはじめ関係者の御厚意に感謝する。又本実験の遂行には岡井善四郎技官及び大学院生であった岡田佳之、松井美憲、新田進君らの研究協力に負うところが多かった。ここに感謝の意を表しておきたい。

参考文献

- 1) W. H. Glenn, M. J. Brienza, and A. J. De-Maria: Appl. Phys. Lett. 12 (1968) 54.
- 2) B. H. Soffer and J. W. Linn: J. Appl. Phys. 39 (1968) 5859.
- 3) T. R. Royt, W. L. Faust, L. S. Goldberg, and C. H. Lee: Appl. Phys. Lett. 25 (1974) 514.

- 4) L. S. Goldberg and C. A. Moore: Appl. Phys. Lett. 27 (1975) 217.
- 5) Z. A. Yasa and O. Teschke: Opt. Commun. 15 (1975) 169.
- 6) D. M. Kim, J. Kuhl, R. Lambrich and D. von der Linde: Opt. Commun. 27 (1978) 123.
- 7) L. M. Davis, J. D. Harvey and J. M. Peart: Opt. Commun. 50 (1984) 49.
- 8) M. E. Mack: Appl. Phys. Lett. 15 (1969) 166.
- 9) G. Mourou, G. Busca, and M. M. Denariez-Roberge: Opt. Commun. 4 (1971) 40.
- 10) C. Lin, T. K. Gustafson and A. Dienes: Opt. Commun. 8 (1973) 210.
- 11) A. Penzkofer, W. Falkenstein: Opt. Quant. Electron. 10 (1978) 399.
- 12) W. Falkenstein, A. Penzkofer, and W. Kaiser: Opt. Commun. 27 (1978) 151.
- 13) A. Scavennec: Opt. Commun. 17 (1976) 14.
- 14) J. P. Heritage and R. K. Jain: Appl. Phys. Lett. 32 (1978) 101.
- 15) C. P. Ausschnitt and R. K. Jain: Appl. Phys. Lett. 32 (1978) 727.
- 16) M. Yamashita and T. Sato: Appl. Opt. 21 (1982) 2092.
- 17) T. Sizer II, J. D. Kafka, A. Krisiloff and G. Mourou: Opt. Commun. 39 (1981) 259.
- 18) J. M. Clemens, J. Najbar, I. Bronstein-Bonte, and R. M. Hochstrassar: Opt. Commun. 47 (1983) 271.
- 19) R. L. Fork, B. I. Greene and C. V. Shank: Appl. Phys. Lett. 38 (1981) 671.
- 20) 北島, 尾崎, 瀧吞, 岡井, 岩沢: レーザー研究 19 (1991) 114.
- 21) Y. Ishida, A. Nakamura, K. Naganuma and T. Yajima: Opt. Commun. 39 (1981) 411.
- 22) G. A. Mourou and T. Sizer II: Opt. Commun. 41 (1982) 47.
- 23) T. J. Chuang and K. B. Eisental: Chem. Phys. Lett. 11 (1971) 368.
- 24) G. R. Fleming, J. M. Morris and G. W. Robinson: Chem. Phys. 17 (1976) 91.
- 25) G. Porter, P. J. Sadkowski and C. J. Tredwell: Chem. Phys. Lett. 49 (1977) 416.
- 26) D. Reiser and A. Laubereau: Opt. Commun. 42 (1982) 329.
- 27) P. J. K. Wisoff and R. G. Caro: Opt. Commun. 54 (1985) 353.
- 28) G. Marowsky, P. Anliker and Q. Munir: Opt. Commun. 45 (1983) 183.
- 29) 北島, 塩見, 岡田, 新田, 山本, 岡井, 岩沢: 福井大工研報告 38 (1990) 105.
- 30) 北島: 福井大工研報告 (1991) 投稿予定.