

波長可変色素レーザーの高出力狭帯域化

武藤 真三
 管野 進
 長沢 直樹
 内藤 芳一
 長谷川 広之
 伊藤 千秋

(昭和52年 8月31日受理)

Power Increasing and Spectral Narrowing of Tunable Dye Lasers

by Shinzo MUTO, Susumu KANNO, Naoki NAGASAWA,
 Yoshikazu NAITO, Hiroyuki HASEGAWA and Chiaki ITO

Abstract

The characteristics of a flashlamp pumped dye laser using the mode selection mirror composed with six optical flat plates is investigated. The laser power increasing and its spectral narrowing are improved by the factor of 70 as compared with that using the conventional mirrors. Furthermore, for the purpose of power increasing and spectral narrowing of the nanosecond pulse dye laser, the N_2 laser pumped oscillator-amplifier dye laser system is also investigated and the optimum condition of the optical amplification is found.

1. ま え が き

波長可変色素レーザーは原子吸光分析や飽和分光などの分光学における重要な光源として注目され、また、最近ではプラズマ診断や同位元素分離および波長可変UV光、VUV光発生などに利用され、その他種々の物性研究などの理工学分野において広く興味もたれている^{1)~3)}。これらの色素レーザー応用においては、レーザー出力の大きいことと発振波長の狭帯域化が望まれるが、波長選択狭帯域化素子を色素レーザー共振器内に複数個挿入する一般的な共振器構成ではレーザー出力の著しい低下をきたし、これが利用上の大きな障害となっている。この出力低下の改善方法として、励起効率の増大、forced oscillator方式による高出力化などがな

されているが^{4),5)}、本研究においては、レーザー用ミラーに波長狭帯域化特性をもたせた簡単な共振器構成によるフラッシュランプ励起色素レーザーの高出力狭帯域化と、光増幅による N_2 レーザー励起色素レーザーの高出力狭帯域化について実験を行った。その結果、波長狭帯域化特性をもつミラーとして透明オプティカルフラット板を6枚積層した構造のもの(以後OPF6ミラーと呼ぶ)を用いたフラッシュランプ励起色素レーザーの場合、発振スペクトル幅は $0.02\sim 2\text{\AA}$ に狭帯域化され、その出力は誘電体蒸着広帯域ミラー共振器構成の場合に比して約70倍の増大が得られた。また、パルス幅の短い N_2 レーザー励起のoscillator—amplifier方式色素レーザーにおける出力特性および最適増幅条件などが実験的に明らかにされた。これらの実験結果について

て報告する。

2. OFP 6 ミラーを用いた色素レーザーの高出力狭帯域化

色素レーザーの波長選択狭帯域化を行う方法としては、一般に、広帯域なレーザー共振器内にエタロンなどの干渉フィルタやプリズムなどを複数個挿入する方法がとられている。しかし、これらの方法では挿入損、反射損などが増大してレーザー出力の著しい低下をきたしている。本節ではこの色素レーザーの高出力狭帯域化を目的として、レーザー用ミラーに波長狭帯域化特性をもたせた簡単な共振器構成によるフラッシュランプ励起色素レーザーの特性について検討した。

2.1 OFP 6 ミラーの反射率特性

色素レーザーの波長狭帯域化用ミラーとして、透明オプティカルフラット板（厚さ10mm, 面精度 $\lambda/15$, 平行度5秒以内, 屈折率1.51のBK-7ガラス板, これを以後OF板と呼ぶ）を6枚積層したミラー（OFP 6ミ

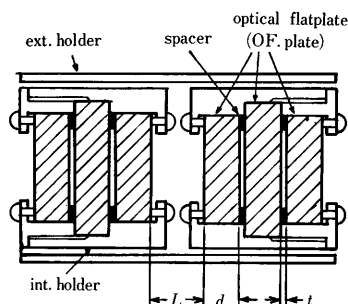


Fig. 1 OFP 6 mirror

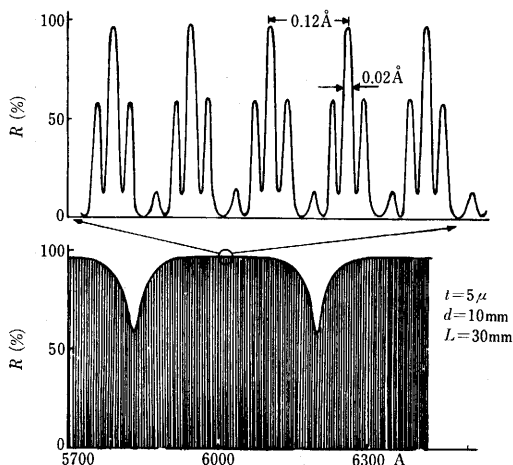


Fig. 2 OFP 6 mirror reflectivities

ラー)を製作した。図-1にその構成図を示す。図-1において、スペーサは $t=5\mu\text{m}$ のマイカ片を用い、また $L=30\text{mm}$ に調整した。この OFP 6 ミラーの反射率は多重反射の理論によって計算できる^{5),6)}。図-2に波長6000Å付近での計算結果を示す。その反射率特性によると、スペーサの厚さによる360Å間隔の dipを生ずるが広い波長範囲にわたって0.12Å間隔に帯域幅0.02Åの高い反射率（ピーク反射率89%）を有していることがわかる。それゆえ、このミラーを色素レーザー共振器構成に用いることによって、発振スペクトル幅0.02Å程度で0.12Å間隔の準連続的波長同調が期待できる。

2.2 フラッシュランプ励起色素レーザーの特性

実験はフラッシュランプ励起の色素レーザーについて行った。フラッシュランプと色素セル（ $4\phi \times 120\text{mm}$, 活性長80mm, 端面プリュスタ角）は石英管で自作した。色素はローダミン6G（溶媒はエタノールを使用）を用い、色素劣化を防ぐため溶液は循環させた。フラッシュ光のパルス幅は $1\mu\text{sec}$ で、くり返しは最高1ppsである。レーザー共振器は100%誘電体蒸着ミラーと OFP 6 ミラーで構成し、共振器長は50cmにとった。図-3に実験系を示す。このときレーザー発振は色素濃度 $1 \times 10^{-5} \sim 8 \times 10^{-4} \text{mol/l}$ の範囲で得られ、最大出力の得られる濃度は $4 \times 10^{-4} \text{mol/l}$ のときであった。図-4中の(a)はフラッシュランプの電気入力に対するレーザー出力を測定した結果である。また、図-4中の(b)は OFP 6 ミラーのピーク反射率と同じ98%反射の誘電体蒸着広帯域ミラーを OFP 6 ミラーの代りに出力側に用いた通常の共振器構成の場合の出力特性である。図-4から明らかなように、OFP 6 ミラー共振器を用いたときのレーザー出力は通常の共振器構成の場合(b)に比して約70倍に増大した。次に、全レーザー光信号 S_1 と分光器（出射窓帯域0.2Å）によってふり分けられた各モードの信号 S_2 をオシロスコープで観測し、この S_1 のピーク出力に対する S_2/S_1 の時間変化特性

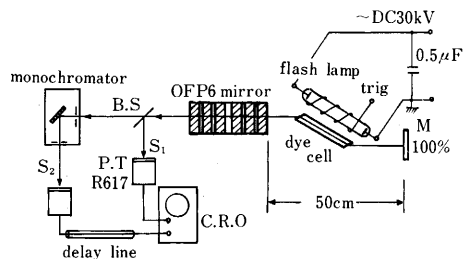


Fig. 3 Experimental apparatus I

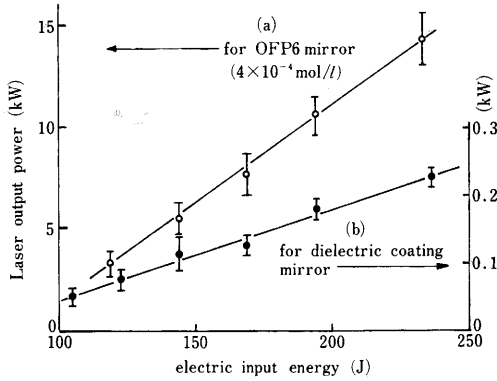


Fig. 4 Laser output power vs. input energy

を測定した。その結果を図-5に示す。このときの色素濃度は $2 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$ である。図-5において、発振光のパルス幅は $1 \mu \text{ sec}$ であるがその立ち上がり、すなわち発振開始から 300 nsec まではレーザー出力は中心波長（この場合 6005 \AA ）付近のみが急峻に増大し、他の波長での発振が抑えられている。さらに、 400 nsec 以上過ぎるとレーザー出力は減少し始め、また、そのピーク値の短波長側へのわずかなシフトがみられたが、全体としてスペクトル包絡線半値幅 $2 \sim 3 \text{ \AA}$ の狭帯域化が観測された。このときのスペクトル幅は通常の誘電体蒸着広帯域ミラー共振器による色素レーザーのスペクトル幅（図-6(a)に観測結果の一例を示した）に比して $1/60$ 以下になっている。このスペクトル包絡線幅の狭帯域化と図-4における高出力化は、OF板やスペーサの厚さのわずかな相違によって OFP 6 ミラーのピーク反射率が計算値のように一様でなく離散的に

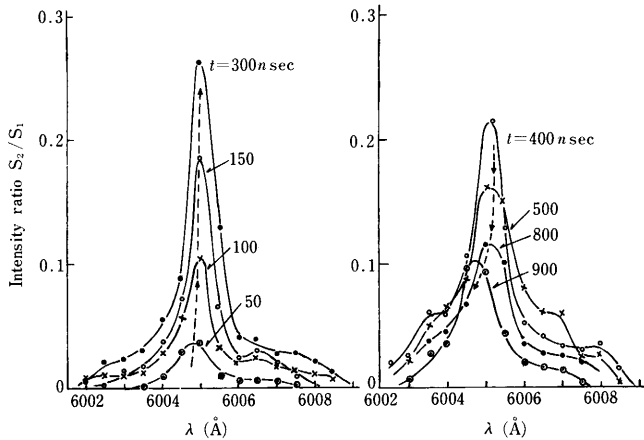


Fig. 5 Time dependence of dye laser spectrum

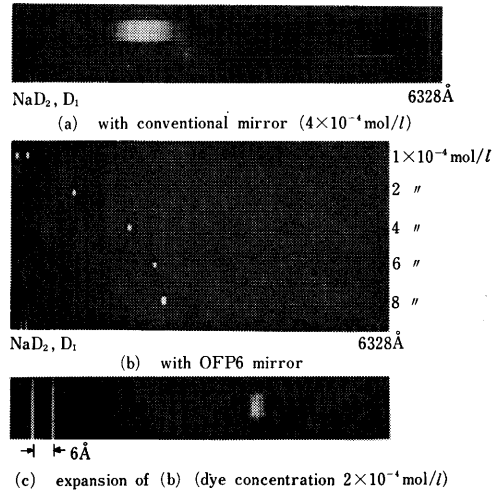


Fig. 6 Laser spectra vs. dye concentration

Q値の大きいところが生じたため、あるいは、色素利得のピーク値付近でのモード競合効果などによると考えられるが詳細については検討中である。また、図-5において発振時間が 400 nsec 以後の出力ピーク値の短波長側へのシフトは、色素溶液中の熱的レンズ効果や三重項吸収によるQ値の低下によるものと考えられる⁷⁾。図-5と同様な特性は色素濃度を変えたときにも観測された。そのときの写真分光による観測結果を図-6の(b)に示す。図-6(c)は図-6(b)を拡大したものである。図-6(c)から明らかなように、これらのスペクトル包絡線の中には図-2の計算結果に対応する10数本の中

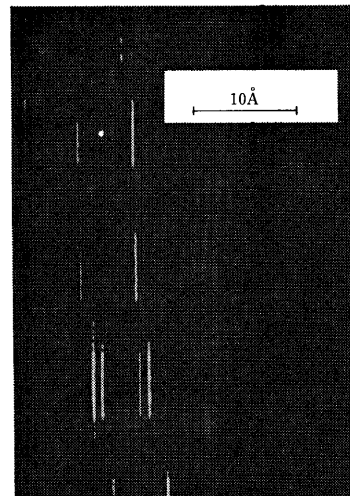


Fig. 7 Laser spectra tuned with etalon

細い発振線が見られる。そこで次に、図-3のレーザー共振器内へ透明 OF 板 2 枚で構成したエタロン (free spectral range 1.2Å) を 1 個挿入して細い発振波長の選択を試みた。その実験結果を図-7に示す。なお、このときのレーザー出力は 1~2 kW であった。図-7から明らかのように、図-2の計算値とはほぼ一致するスペクトル幅 0.02~0.08Å 狭帯域波長選択が得られたが単一スペクトルを得るには至らなかった。しかし、エタロンのフィネスを改善することによってスペクトル幅 0.02Å の単一波長発振も可能と思われる。

このように OFP 6 ミラーを用いると、色素レーザー出力は通常の共振器構成の場合に比して約70倍に増加し、単一波長幅当たりのエネルギーは 250 倍の 500W/Å を得た。また、この共振器内へ透明 OF 板構成のエタロンを 1 個挿入した波長選択においても著しい出力低下なしにスペクトル幅 0.1Å 以下の狭帯域波長選択が可能なが実験的に示された。

3. 光増幅によるナノ秒色素レーザーパルスの高出力化

励起単位寿命の短い物質中の共鳴現象などの研究においては、それらの物質のエネルギー準位に共鳴したスペクトル幅の狭いかつ高出力の短パルス光源が必要である。このような光源としてはレーザー励起の波長可変パルス色素レーザーが最も適すると考えられるが、その高出力狭帯域化が問題となっている。本節では、そのような波長可変でスペクトル幅の狭い高出力のナノ秒パルスレーザー光を発生させるため、N₂ レーザ励起 oscillator-amplifier 色素レーザーを構成してその特性について検討した。

3.1 波長可変ナノ秒パルス色素レーザー発振器の特性

色素レーザー発振器の共振器は回折格子(1200本/mm)と50%透過出力ミラー、および光軸に対してブリュスタ角に設置した色素セルからなる。色素セルはレーザー発振と超放射の同時発生いわゆる double-emission を

防ぐため活性長 1 mm の薄型にし、パルス幅 6nsec の紫外 N₂ レーザ光で縦励起した^{8),9),10)}。色素としてローダミン 6 G (溶媒はメタノール使用) を用いたとき、レーザー発振は色素濃度 $4 \times 10^{-4} \sim 3 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ の範囲で得られ、出力が最大となるのは $1 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ のときであった。図-8に N₂ レーザ励起光とこのとき得られた色素レーザー発振光の波形を示す。色素レーザー光のパルス幅は 3nsec と短く、種々の物質の励起単位寿命測定などに対して時間分解のよい光源として期待できるものである。また、その発振スペクトル幅は回折格子によって 10Å 以下に狭帯域化され、図-9に示すように 200Å の範囲にわたって波長可変できた。この波長可変範囲は色素濃度を変えることによって 300Å まで広げることが可能であった。なお、この色素レーザーにおいて共振器長 l を 17cm 以上になるとレーザー出力は著しく低下したので以後の実験においては $l=12\text{cm}$ 一定として使用した。共振器長が大きいときの出力低下の原因は、励起光のパルス幅および色素の励起単位寿命がともに 5~6 nsec と短いため寿命内に利得を高めることが制限されること、および、回折損などの共振器損失の増大などによるものである。また、図-10

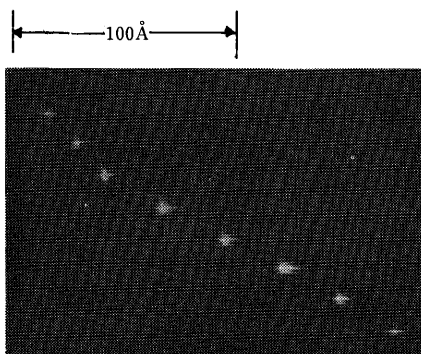


Fig. 9 Laser spectra tuned with grating

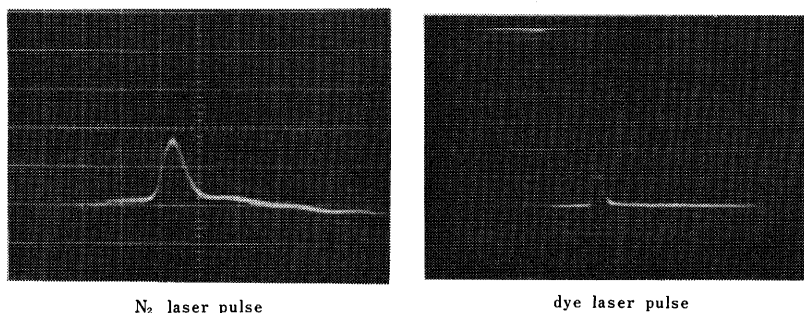


Fig. 8 Pumping pulse and dye laser pulse (10nsec/div)

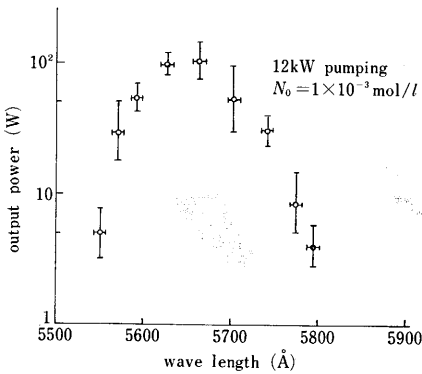


Fig. 10 Output power vs. lasing wave length tuned with grating

には発振波長を可変したときの出力特性の一例を示す。回折格子によってスペクトル幅を10Å以下に狭帯域化すると、レーザ出力は回折格子の代わりに100%誘電体蒸着ミラーを用いたときの広帯域発振(そのときの発振スペクトル幅は100~150Å)の場合に比して1/5以下に低下し、また、図-10の結果にみられるように発振波長の選択によっても出力の低下をきたした。それゆえ、この色素レーザの利用においてもレーザ出力の高出力化が必要となる。しかし、その高出力化の方法として2節と同様な OFP 6 ミラーの使用はレーザ共振器長が大きくなるため適当でない。そこで、光増幅による高出力化について実験を行った。

3.2 N₂ レーザ励起有機色素による光増幅

レーザ光の増幅は活性媒質の励起準位寿命が比較的に長いパルスレーザ系あるいはCWレーザ系などでは容易になされる。しかし、有機色素のような励起準位寿命の短い活性媒質を増幅段に用い、かつ励起光および入力信号光ともパルス幅が短いときには励起のタイミングが非常に問題となる¹¹⁾。すなわち、増幅段の色素分子が励起されている短い時間内(数nsec以内)に入力信号光が入射しなければ光増幅は生じない。そこで、この光増幅に関する最適増幅条件の決定、および種々の増幅特性などについて実験を行った。このときの実験系を図-11に示す。まず増幅段における励起色素分子の分布反転と入射レーザ光信号との時間的相なりを最適とする励起のタイミング条件を見つけるため、図-11の実験系に示すように励起光パルスと入射レーザ光パルスをそれぞれ光学的に遅延させて増幅利得の時間変化を測定した。なお、この実験系においてはN₂レーザビームを2つに分けて発振段と増幅段の励起に用いた。また、増幅段色素セルは発振段に用いたものと同じ構造のものを使用した。図-12はこのと

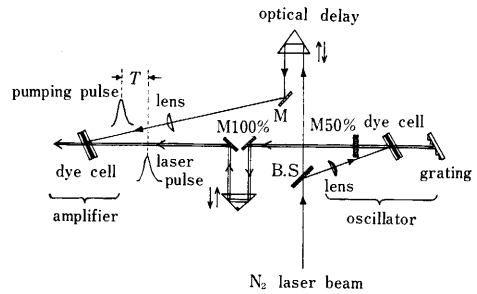


Fig. 11 Oscillator-amplifier dye laser system

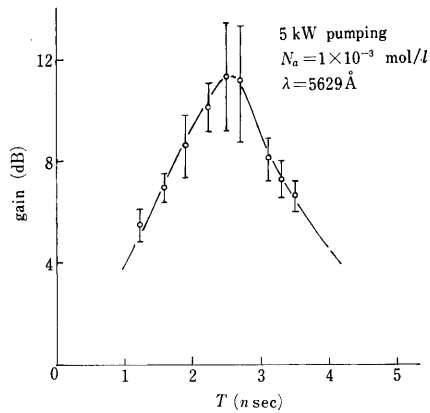


Fig. 12 Temporal gain characteristics in dye amplifier

き得られた実験結果である。図-12における横軸Tは励起光のピークから入射レーザ光のピークまでの時間間隔である。図-12から明らかなように、増幅利得が最大となるのは励起光を照射後2.5nsec遅れて色素レーザ光が増幅段色素セルに入射したときで、6nsec以上遅れると光増幅は生じない。すなわち、励起のタイミングの極めて精度良い調整が重要であることがわかる。この最適遅れ時間をT_dとし、T_dに合わせて入力レーザ光を入射させることを同期をとると呼ぶことにする。

ところでこの同期調整に関する情報は、励起光のパルス幅が色素の三重項準位の寿命に比して短いのでその寄与を無視した次のレート方程式から近似的に求めることもできる¹²⁾。

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{n}{N} \right) = \frac{P(t)}{A} \cdot \frac{\sigma_a(\lambda_p) \lambda_p}{hc} \left(1 - \frac{n}{N} \right) - \frac{1}{\tau_f} \left(\frac{n}{N} \right) \quad (1)$$

ここで、nは励起準位の色素分子数、Nは全色素分子数、P(t)は励起光強度、Aは励起されている部分の断面積、λ_pは励起光波長(3371Å)、σ_a(λ_p)は吸収断面積(2.4×10⁻¹⁷cm²)、τ_fは励起準位寿命(5~6

n sec), h はプランク定数, c は光速である。

簡単のために励起光波形を次式のように近似する。

$$P(t) = P_0 \sin\left(\frac{\pi t}{2T_p}\right), \quad 0 < t < 2T_p$$

$$= 0, \quad 2T_p < t$$
(2)

ただし, P_0 はピーク強度, T_p はピーク強度となる時間である。この(2)式は図-8に示した N_2 レーザ光の波形に対して比較的良好な近似を与えている。(2)式を(1)式に代入して n/N を求めた計算結果の一例を図-13に示す。図-13において, n/N が最大となる時にレーザー光が増幅段色素セルへ入射する場合に最大増幅が得られることになる。すなわち, 図-13における T_d が最適遅れ時間を与える。そこで $P(t)$ の最大と n/N が最大となる間の時間間隔

$$T_d = (n/N \text{ が最大となる時間}) - T_p \quad (3)$$

を種々のパルス幅をもつ励起光に対しても求めてみた。その結果を図-14に示す。図-14には図-12の実験結果を併せて示した。実験値は誘導放出の効果が入っているため計算値より小さいが比較的良好一致がみられる。また図-14より, 励起光のパルス幅変化に対応

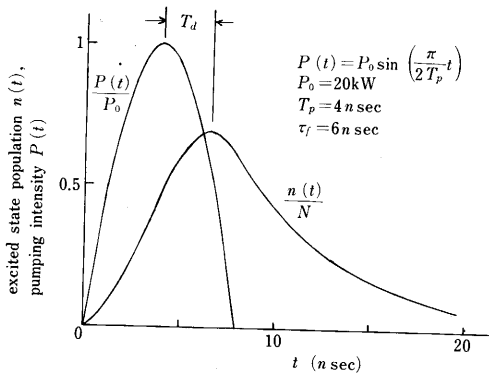


Fig. 13 Time dependence of excited state population

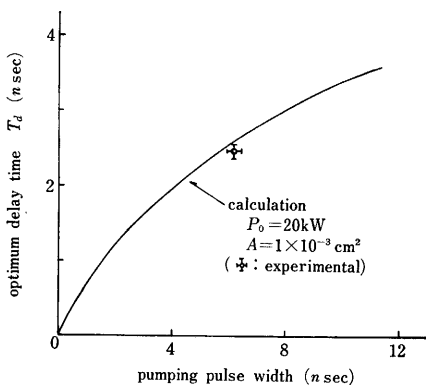


Fig. 14 Optimum delay time to obtain the maximum gain vs. pumping pulse width

した細い同期調整が必要であることもわかる。

次に, 以上のような同期調整を行った上で, 増幅段における色素濃度変化に対する増幅利得を測定した。図-15は発振段の色素濃度 N_0 を $1 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ にし, 発振波長 5629 \AA , スペクトル幅 10 \AA に設定したときの実験結果である。図-15の結果から明らかなように, N_2 レーザ励起 oscillator-amplifier 色素レーザーにおいては増幅段の色素濃度 N_a を発振段の濃度 N_0 よりわずかに低く選ぶ方が増幅利得は増大することがわかる。また, このときの増幅段における入射レーザー光と出力レーザー光のスペクトル幅変化の一例を図-16に示した。図-16において, 出力レーザー光のスペクトル幅は入射レーザー光のそれに比して0.6倍に狭帯域化されているが, これは, 増幅段中での誘導放出の遷移確率

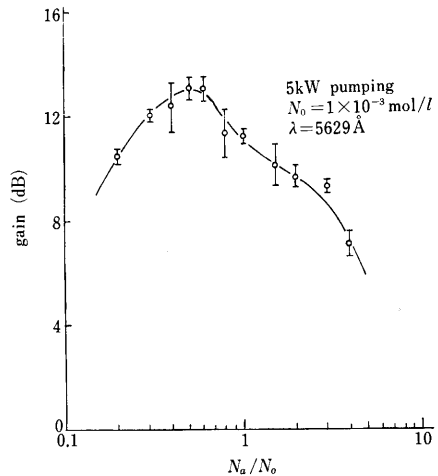


Fig. 15 Gain of dye amplifier vs. dye concentration (N_a : dye concentration in amp, N_0 : in osc)

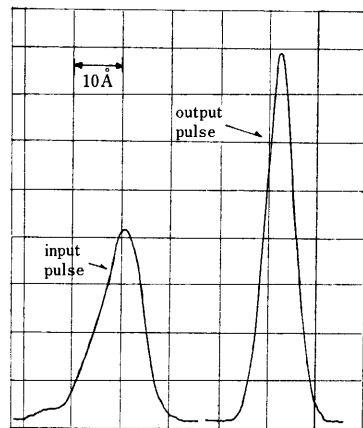


Fig. 16 Spectral width of input pulse and output pulse

が光子数に比例するため光増幅が入射レーザー光のピーク強度波長付近で強く生ずることによる。すなわち、増幅段色素セルを通過することによって色素レーザー光は高出力化されると同時にそのスペクトル幅は active に狭帯域化された。

以上のような最適増幅条件、すなわち、図-12、図-14における同期調整と図-15における最適濃度（例えば $N_a=6 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$ ）を用いたとき、この光増幅による色素レーザー系においては、全 N_2 レーザ光強度 20 kW、そのうち増幅段の励起強度 4 kW のときでも発振波長 5590Å、スペクトル幅 6Å のレーザー出力は 4.8kW が得られ、20kW 励起の発振器のみの最大出力 400W に比して12倍以上の高出力化が得られた。しかし、この増幅段における利得が可調範囲で一様でないという問題点が残っている。図-17は発振波長を変えたときの増幅段の利得曲線の測定結果の一例である。このように増幅利得のピークは短波長側に片寄っており、長波長側では利得は小さい。この増幅段の利得曲線を flat に改善する方法として、発振波長域で吸収が小さく、かつ、より長波長側に利得のピークをもつ他の色素の混合などが考えられるが、それらについての検討はまだ行っていない。

4. あとがき

波長可変色素レーザーの高出力狭帯域化を目的として、波長狭帯域化特性をもつ OPF 6 ミラーを用いた簡単な共振器構成によるフラッシュランプ励起色素レーザーと N_2 レーザ励起 oscillator-amplifier 色素レーザーの発振特性および光増幅特性について実験的に検討した。

その結果、前者の場合は誘電体蒸着広帯域ミラー共振器によるレーザー発振に比してレーザー出力は70倍に増大し、500W/Å の出力を得た。また、著しい出力低下なしにスペクトル幅 0.02~2Å の波長狭帯域化と発振波長の選択が得られた。後者においては、同期調整、濃度特性などの光増幅に関する種々の条件が実験的に検討され、ナノ秒パルス色素レーザー光の高出力狭帯域化がある程度達成できた。

現在、これらの高出力狭帯域化された色素レーザーを用いて、波長可変 UV 光、VUV 光発生、および、それによる蒸気色素の励起などの実験について検討中であるが、それらについては後日報告する予定である。

終わりに、有益な助言を賜った本学電気工学科伊藤洋助教授、中川恭彦助教授、中沢章助手ならびに色素材料などに関して協力いただいた保坂桂子教務員に深

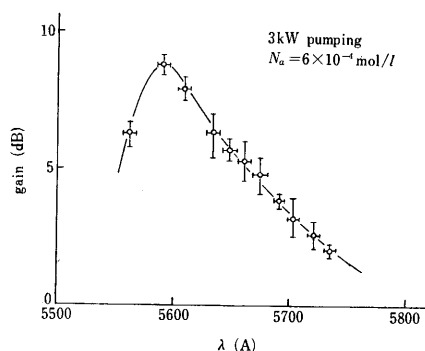


Fig. 17 Gain curve in dye amplifier

謝する。なお、この研究の一部は実吉奨励金を用いて行われた。

文 献

- 1) G. S. Janes, I. Itzkan, C. R. Richard, R. H. Levy and L. Levin: Two-Photon Laser Isotope Separation of Atomic Uranium, IEEE J, QE-12, 2, p 111 (Feb, 1976)
- 2) E. L. Baardsen, R. W. Terhune: Detection of OH in the Atmosphere using a Dye Laser, Appl. Phys. Lett, 21, 5, p 209 (Sept, 1972)
- 3) A. Hirth, K. Vollrath and J. Y. Allain: Production of High Power Tunable UV Laser Emission by Second-Harmonic Generation from a Rhodamine 6G Dye Laser, Opt. Commun, 20, 3, p 347 (March, 1977)
- 4) 前田, 内野, 岡田, 宮副: Forced Oscillator を用いた高出力狭帯域色素レーザー, 信学技報, 75, 88, p 69 (1975, 7)
- 5) 武藤, 菅野, 長沢, 伊藤: 色素レーザーの高出力狭帯域化, 信学会全国大会講演集, 809 (1975)
- 6) 白根, 伊藤, 武藤: オプティカルフラット板積層ミラーによるルビーレーザーのモード選択, 山梨大学工学部研究報告, 27, p 141 (1976, 12)
- 7) M. J. Weber and M. Bass: Frequency and Time-Dependent Gain Characteristics of Dye Laser, IEEE J, QE-5, 4, p 175 (April 1969)
- 8) J. Schubert: Superradiation and Double-Emission of Organic Dyes, Phys. Lett, 34A, 7, p 381 (April, 1971)
- 9) 杉浦, 藤岡: 有機色素におけるスーパーラディアンズとレーザー発振, 信学会光・量エレクトロニクス研究, p 13 (1974)
- 10) 武藤, 島, 伊藤: 有機色素の Double Emission 特性, 信学会全国大会講演集, 775, (1976)
- 11) I. Itzkan and F. W. Cunningham: Oscillator-Amplifier Dye Laser System using N_2 Laser Pumping, IEEE J, QE-8, 2, (Feb, 1972)
- 12) U. Ganiel, A. Hardy, G. Neumann and D. Treves: Amplified Spontaneous Emission and Signal Amplification in Dye Laser System, IEEE J, QE-11, 11, p 704 (Nov, 1975)