

波長可変色素レーザーシステムにおける超放射特性

青森職業能力開発短期大学校 須田 潤

Superradiant Properties of Tunable Dye Laser System

Jun Suda

要約

レーザー色素は増幅利得が高く、レーザー共振器を構成しない場合、高色素濃度になると2準位原子系を仮定した超放射特性を有し、そのエネルギー効率はパルス動作の場合、一般に色素レーザー動作に比較し高いことなどが知られている。しかしながらレーザー共振器を構成した場合の色素レーザーシステムにおける超放射モード及びレーザーモードの実験的検討は、あまり詳しくはなされていないようである。

そこで本研究では有機色素レーザーシステムからの超放射特性を調べることを目的とし、レーザー色素として代表的なローダミン6Gを主に用い、QスイッチNd:YAGレーザー第2高調波を励起光源として自作した半球面レーザー共振器より構成された液体及び固体色素レーザーシステムにおける超放射特性の実験的検討を行った。本研究のレーザー媒質は液体レーザーシステムの場合には色素をエチルアルコールに常温で溶解させて用い、固体レーザーシステムの場合には高分子材料であるポリビニルアルコールに色素をドーブし、それをスピナ法で固体薄膜として用いた。その結果、ローダミン6G液体色素レーザーシステムにおいて一般に報告されているものと類似した放射強度の濃度依存特性が得られ、そのときレーザーモードと超放射光が同時発生していることを明かにしている。

1. まえがき

色素レーザーは波長可変特性⁽¹⁾を有しその同調範囲が、極めて広いことから古くから研究されてきた。近年それらの特性を利用し、超短光領域で動作可能な種々の色素レーザーシステムが提案され実験、理論の両面から研究されている⁽²⁾。また色素レーザーは増幅利得が高く、レーザー共振器を構成しない場合、高色素濃度で用いれば2準位原子系を仮定した超放射特性を有し⁽³⁾、そのエネルギー効率はパルス動作の場合、一般に色素レーザー動作に比較し高いことなど⁽⁴⁾が報告されている。また、色素レーザーシステムにおいてレーザー媒質が液体あるいは固体に限らず通常のレーザーモードと超放射モードの同時発生が、引き起こされる場合⁽⁵⁾がある。従ってこの超放射モードがレーザーモードに結合すれば、高効率な色素レーザーが実現できることになり、この方法はポンド長の長いレーザー色素を用いるため、

一般にエネルギー効率が低い近赤外色素レーザーシステム⁽⁶⁾の効率改善にも応用できる可能性がある。

そこで本研究では有機色素レーザーシステムからの超放射特性を調べることを目的とし、レーザー色素として代表的なローダミン6Gを主に用いQスイッチNd:YAGレーザー第2高調波を励起光源として自作した半球面レーザー共振器より構成された液体及び固体色素レーザーシステムにおける超放射特性の実験的検討を行った結果について述べる。II節ではまず本研究で用いた液体及び固体レーザーシステムについて述べ、III節では超放射測定方法について述べ、IV節とV節で得られた測定結果とそれに対する考察をそれぞれのレーザーシステムについて述べる。VI節は結論であり、本論文で得られた結果をまとめ、今後の課題について述べる。

II. 実験装置

1. 液体色素レーザーシステム

図1に用いたレーザシステムの全体図を示す。励起光源はメガワット級QスイッチYAGレーザ(Quanta-Ray MODEL GCR-12SS:波長 $1.06\mu\text{m}$)及び熱位相整合型第二高調波発生装置(Quanta-Ray MODEL HG-2:波長 532nm)を用い、図1に示すようにペランブロッカプリズムにより第二高調波光のみを分離し、石英シリンドリカルレンズにより一条の光に集光して、レンズの焦点位置で光学的に透明な石英ガラス製光学セル(セル長約 1cm 、キャップ付き)中のレーザ媒質(色素溶液)に照射し横励起した。このとき同時に発生する基本波(波長 $1.06\mu\text{m}$)は自作の金属製コーンによるビームダンパーに入射させることにより拡散させ、本システムに影響のないようにしている。レーザ共振器は自作の半球面型であり、アルミニウム蒸着平板ミラー(反射率約90%)と3層の誘電体多層膜出力光ミラー(反射率約70%)を作製して構成した。この半球面共振器の場合のミラーの曲率半径はそれぞれ ∞ と 12cm で共振器内のレーザ光をガウシアンビームと仮定したときレーザビームが十分閉じ込められる条件を満たしている(付録参照)。また共振器長は 10cm と固定している。またレーザ色素は励起用レーザの波長に非常に近い最大光吸収波長(528nm)をもつローダミン6G色素と最大光吸収波長(635nm)が比較的長波長側に離れているナイルブルー色素を使用し、常温でそれぞれエタノールに溶解してレーザ媒質とした。固体レーザシステムの場合には高分子材料であるPVA(ポリビニールアルコール)に色素をドープし、それをスピナ法で固体薄膜を作成してレーザ媒質として用いた。

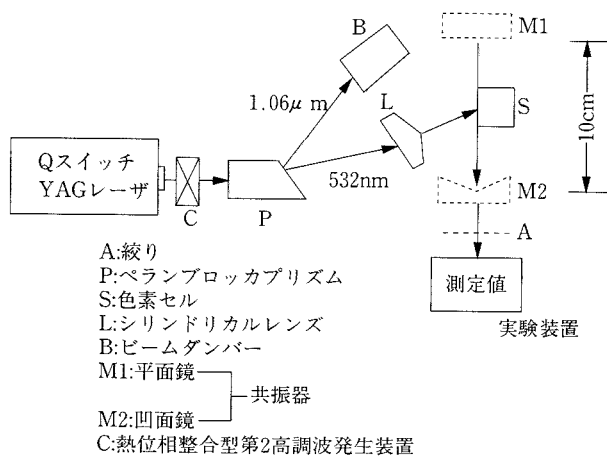


図1 レーザシステム全体図

III. 実験方法

超放射測定系は図2に示すように発光波形特性と発光スペクトル特性を同時に行った。また各測定はレーザ共振器を配置した場合と共振器を配置しない場合(図1において両方のミラーのない場合に対応する)の特性を行っている。ここで発光スペクトル特性は、光学レンズ系により発光出力をプラスチック光ファイバに導入させ、光スペクトラムアナライザ(安藤電気社製AQ6310B)をパソコン(NEC9801F)により GPIB 制御して平均化回数を最大(1000回)にして測定した。また発光波形は被測定光をすりガラスで減光させ、パイプナ光電管(浜松ホトニクス:R1328-03)により受光し、出力波形をシンクロスコープ(岩崎通信社製タイプSS6521、帯域 500MHz)により測定しポラロイドカメラで撮影した。本研究において光強度は発光出力波形の尖頭出力をパイプナ光電管の分光感度から換算して求めている。

IV. 実験結果

(1) 液体型色素レーザシステムについて

図3に使用した励起用レーザ波形とその発光スペクトルを示す。これらの値は用いた励起光源のカタログ値に一致するものである。次に図4にローダミン6G色素を用いた場合のスペクトルと発光波形の一例を示す。レーザ共振器を配置した場合と配置しない場合ともほぼ同様なものが得られ、(写真には示されていないが) 1×10^{-3} (mol/l) 以上の高色素濃度にするると立ち上がり時間が短くなっていく。これは発光寿命が原

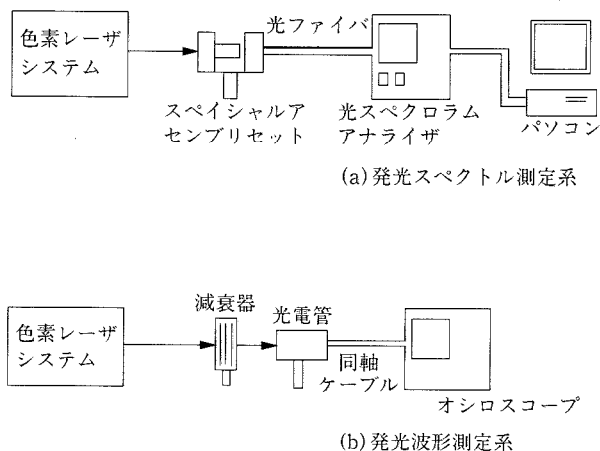


図2 超放射測定系

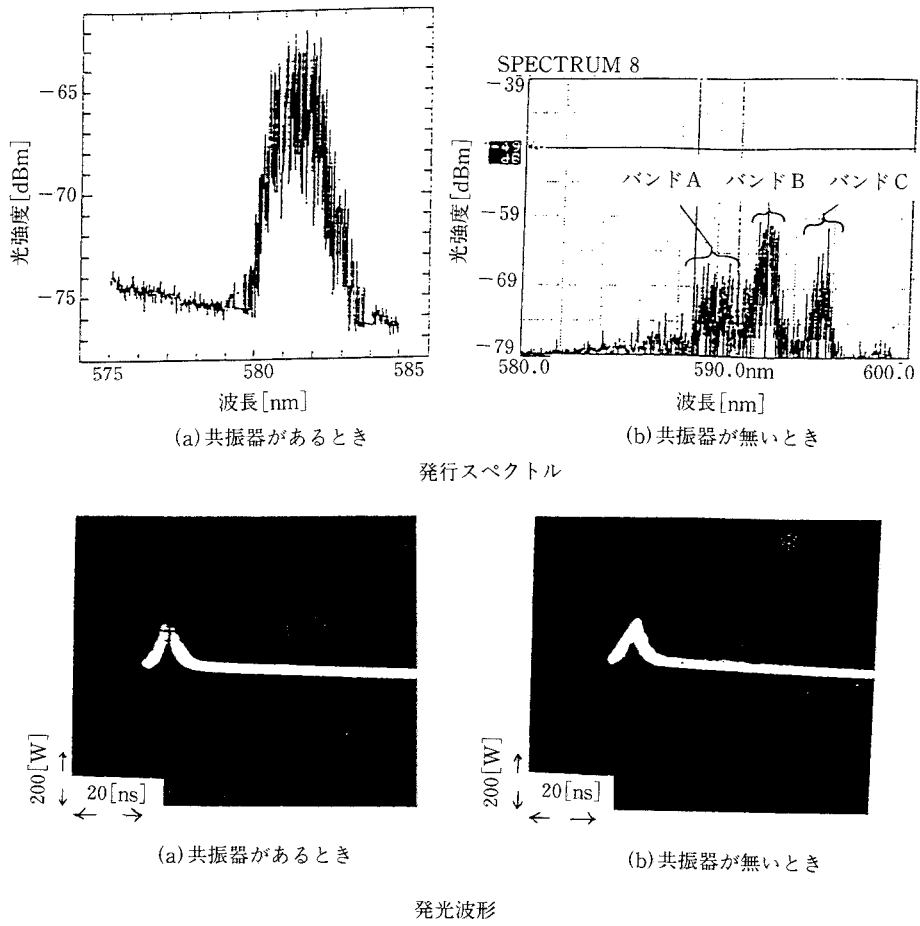


図3 励起光の発光波形とそのスペクトル

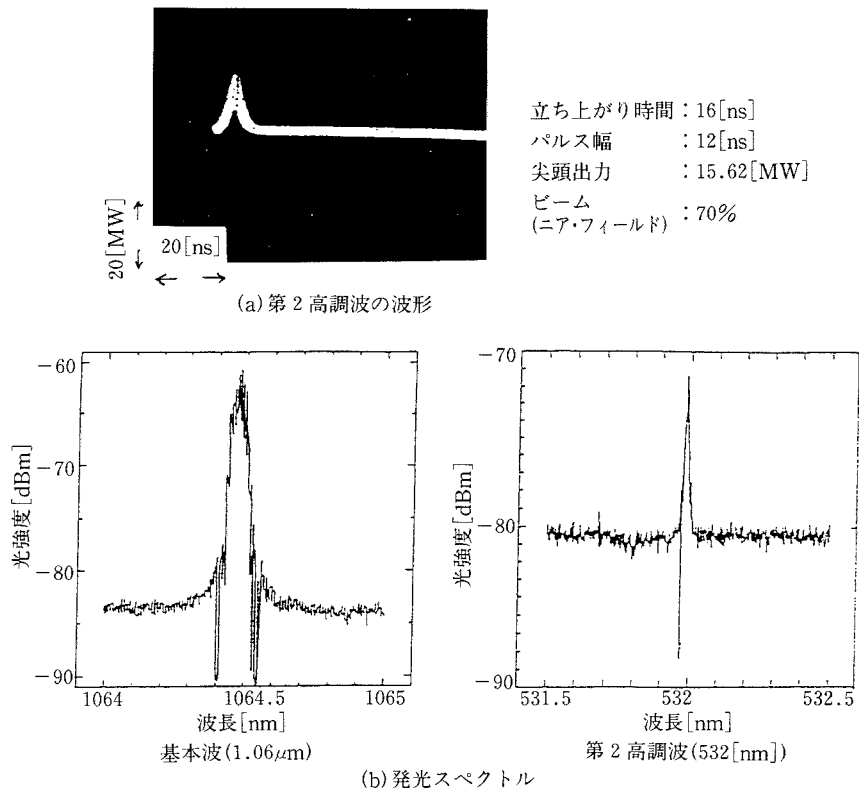


図4 出力発光波形とそのスペクトルの1例
(ローダミンB色素溶液の場合)

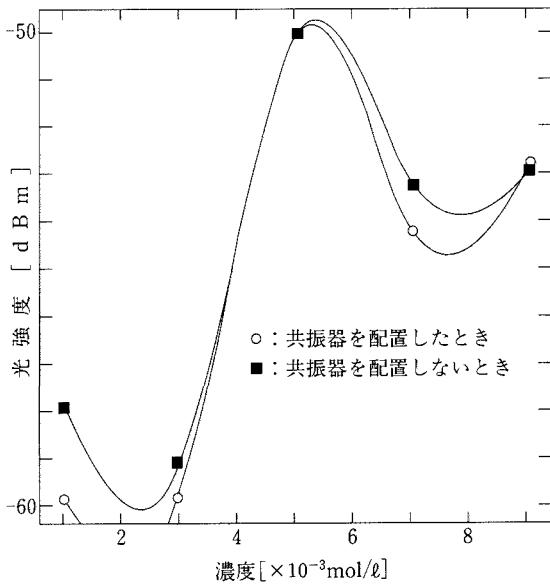
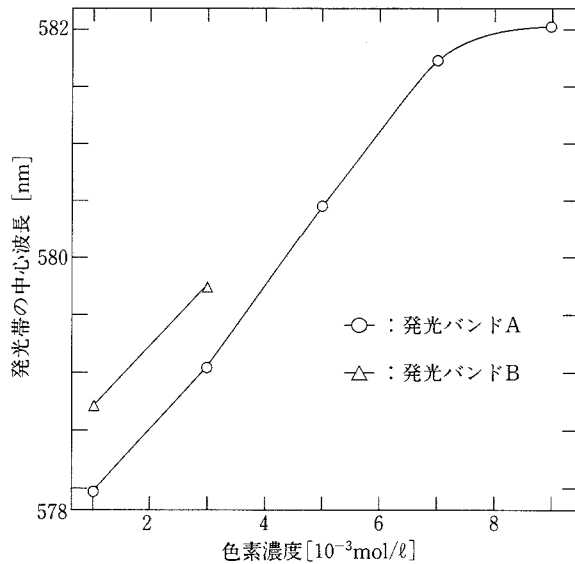
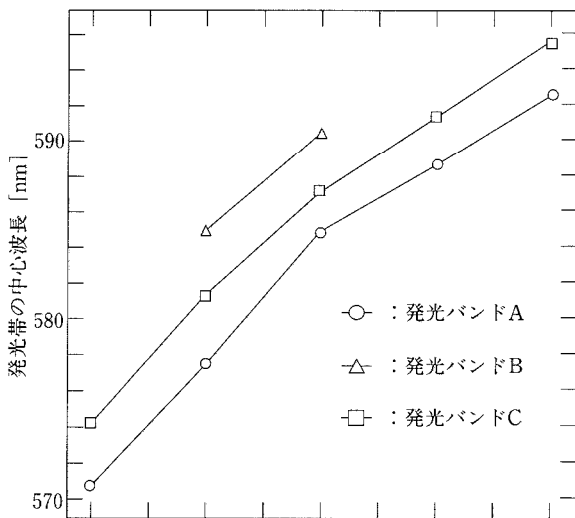


図5 発光強度の色素濃度依存性



(a) 共振器を配置したとき



(b) 共振器を配置しないとき

図6 発光スペクトルの中心波長の色素濃度依存性

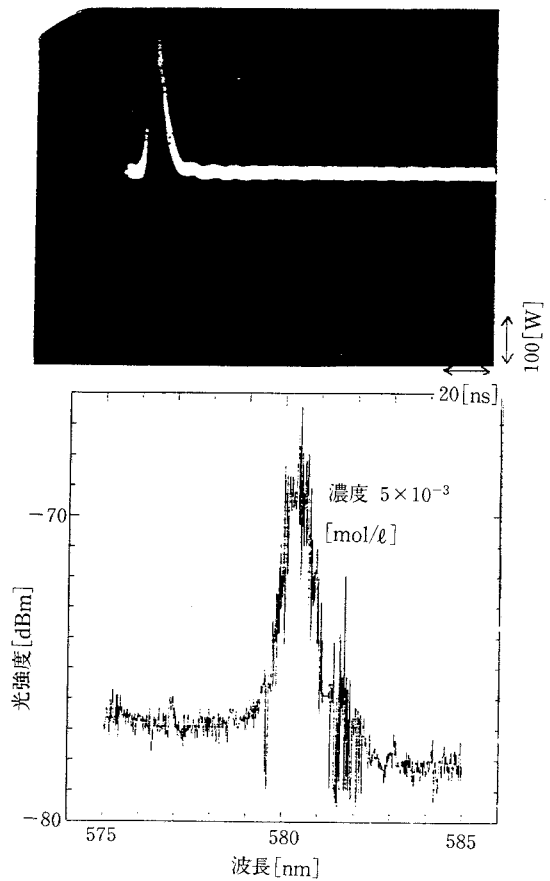


図7 出力発光波形とそのスペクトル (ローダミン6G色素溶液で出力側に絞りを入れた場合)

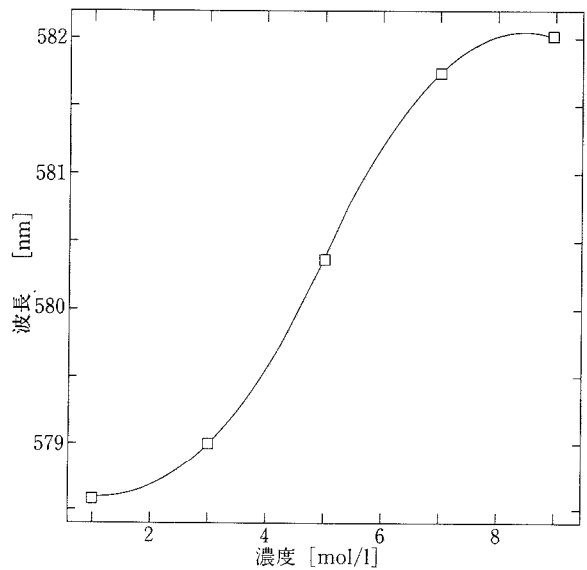


図8 発光スペクトルの中心波長の色素濃度依存性 (ローダミン6G色素溶液で出力側に絞りを入れた場合)

子数に反比例するため、2準位系の超放射特性の1つである。また光強度の色素濃度依存性を図5に示す。光強度が $1 \sim 5 \times 10^{-3}$ (mol/l)の色素濃度範囲において原子数の2乗に比例して増加する様な2準位系の超放射特性がみられる。 5×10^{-3} (mol/l)以上になると、ベールの法則による吸収係数が大きくなるため発光強度が低下すると考えられるが、 8×10^{-3} (mol/l)以上

になると高色素濃度でASE（自然放出の増幅光）が発生し発光強度は上昇している。このことはビームの拡がりが大きくなることから確認された。ここでエネルギー効率 $\leq 0.1\%$ であった。またスペクトルは1~3個のバンド（スペクトル半値全幅約3 nm：波長の小さい方からA、B、Cとする（図4参照））が得られ、レーザーの方がその個数が減少し、全般的なスペクトル幅が狭くなっている。また図6にその発光スペクトルの各バンドの中心波長の色素濃度依存性を示す。レーザー共振器を配置した場合と配置しない場合ともに高濃度になるとその中心波長は長波長側に移行するのがわかる。これは発光スペクトルの波長可変特性である。このシステムにおいて色素濃度 5×10^{-3} (mol/l) のときレーザー出力側に絞（直径0.1mm）を入れて超放射モードをなるべくカットして測定した場合の発光波形及びそのスペクトルと発光スペクトルの中心波長の色素濃度依存性をそれぞれ図7、8に示す。図8より、高濃度になるに従って中心波長が長波長側にシフトしているのがわかる。また得られた発光スペクトルのバンドは全てほぼ1つ（バンドB）になり、スペクトル幅（半値幅）は約1~2 nm程度となっていて、一般に報告されているもの⁽⁶⁾と同程度であるので、レーザーモードになっていることがわかる。次にレーザー共振器を配置した場合（絞を入れないとき）ナイルブルー色素を 5×10^{-3} (mol/l) として用いたときの発光波形及びそのスペクトルと光強度の色素濃度依存性をそれぞれ図9、10にそれぞれ示す。レーザー共振器を配置しない方が超放射特性が顕著であり、図9に示す様に発光スペクトル幅は1.0nm（半値全幅）で共振器を配置した場合はレーザー発振していると考えられ、この場合、図10に示す様に超放射特性がほとんど観察されなかった。また図10において色素濃度 $7 \sim 12 [\times 10^{-3}$ mol/l] の範囲でレーザー共振器を配置しない方はほぼ濃度の2乗に比例する特性が得られている。以上の結果からローダミン6G色素の最大光吸収の波長は528nmで励起用レーザーの波長の近傍であるが、ナイルブルー色素の最大光吸収の波長は635nmでありローダミン6G色素の場合より励起用レーザーの波長から離れているので、レーザー共振器を用いた場合でもローダミン6G色素の方がナイルブルー色素を用いた場合よりASEの影響が強くなり超放射特性が顕著になることを示している。

(2) 固体色素レーザーシステム

固体色素レーザーシステムは(1)と同じレーザー共振器を

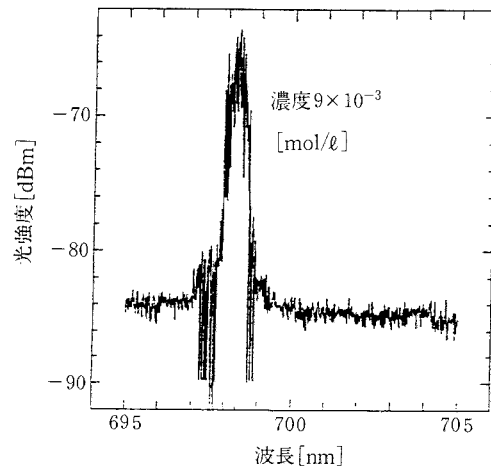
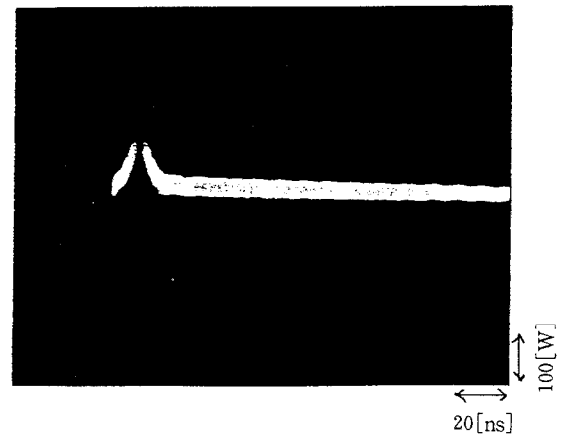


図9 出力発光波形とそのスペクトル
(ナイルブルー色素溶液の場合)

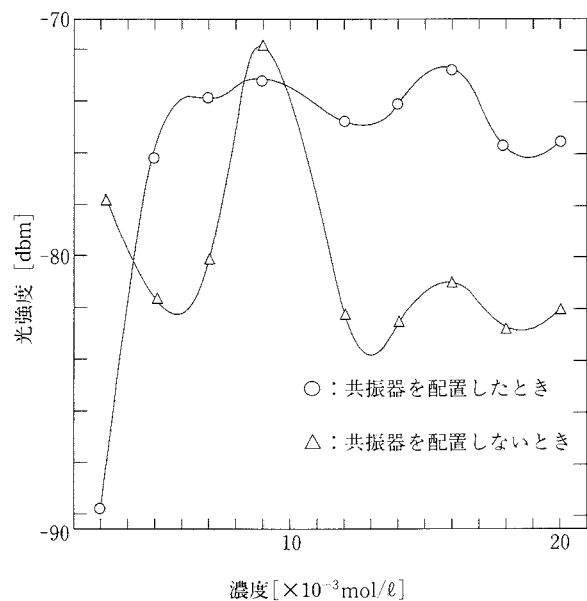


図10 発光強度の色素濃度依存性
(ナイルブルー色素の場合)

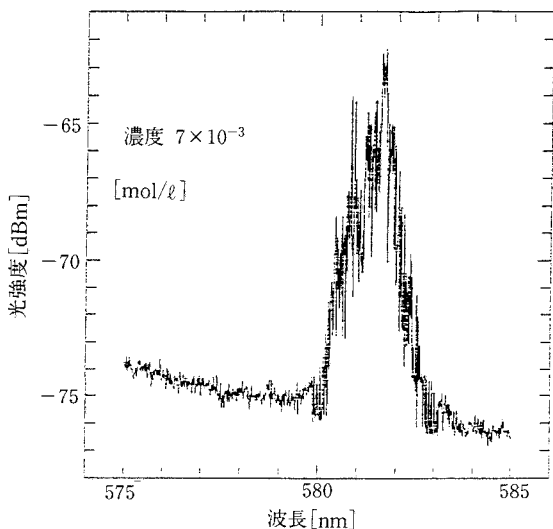
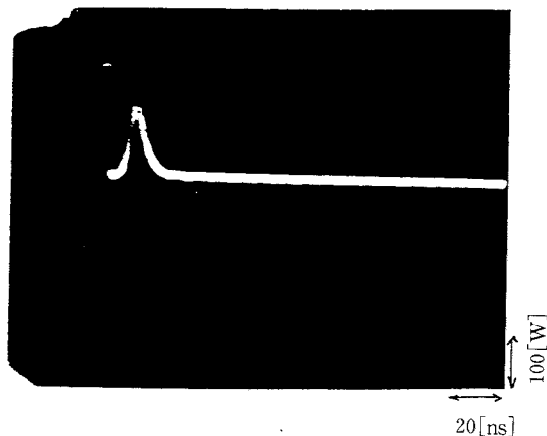


図11 出力発光波形とそのスペクトル (ローダミン6G色素ドープ薄膜の場合)

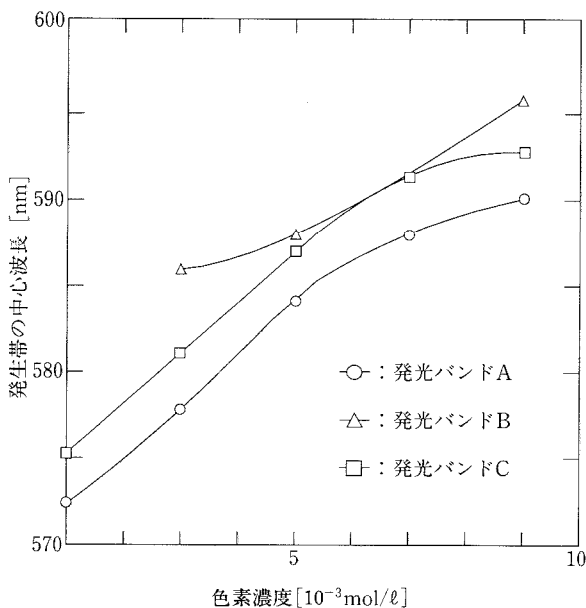


図12 発光スペクトルの中心波長の色素濃度依存性 (ローダミン6G色素ドープ薄膜の場合)

用い、ローダミン6G (m.p60°C)ドープPVA薄膜を色素セルのかわりに配置することにより、その特性を測定した。ローダミン6GドープPVA薄膜は、文献(5)の方法を用い、ローダミン6G色素とPVAを常温でDMSO(ジメチルスルホキシド)に溶解させ、適当な粘性をもった状態にしてスピナで回転数1500rpmでスライドガラス基板(25mm×25mm)に厚さ約10μmの薄膜を作成した。色素濃度 7×10^{-3} (mol/l)で得られた出力発光波形と発光スペクトル(バンドC)と中心波長の色素濃度依存性を図11、図12にそれぞれ示す。発光波形の立ち上がり時間は16nsであり、発光スペクトル幅(バンドC)は2.5nmである。

V. 結果に対する考察

(1) 液体型色素レーザシステムについて

本システムは共振器の有無にかかわらず超放射特性をもつが、共振器を配置したとき出力側に絞りを入れたとき狭帯域化が図られるので図4~7において示したデータにおいて超放射とレーザ発振が同時に起こっていると考えられる。図6においてローダミン6G色素を用いレーザ共振器を配置しない場合、2個以上のバンドが約1.5nmの波長間隔で規則的に存在するが、これはレーザ色素が光増幅度が高いため石英セルと外部空気との屈折率差や色素溶媒中の熱的ひずみのための屈折率変化によるわずかな正帰還に起因して色素セル自体が一種のレーザ共振器としてふるまうためと考えられる。

またナイルブルー色素がローダミン6G色素より励起用レーザの波長における光吸収が小さく、そのためレーザ共振器を用いた場合ナイルブルー色素の場合の方がASEの影響が小さく、超放射特性は得られなかった。

(2) 固体色素レーザシステム

本研究ではスピコーティングによる方法で薄膜を作成したので一様に色素分子が分布しているものは得られ難い。よって作成した薄膜において色素分子の不均一性により色素分子の高濃度な分布が存在し、それに起因してASEが支配的になり、固体色素レーザの場合の特性は液体型でレーザ共振器を配置していない場合と類似したものが得られていると考えられる。

VI. 結論

本研究では有機色素レーザシステムからの超放射特性を調べることを目的とし、液体及び固体色素レーザ

システムにおける超放射特性の実験的検討を行った。その結果、R 6 G色素を液体状態で用いた場合、レーザー共振器を配置した場合も、2準位原子系を仮定したときの超放射特性が得られた。このレーザーシステムにおいてその出力側に絞りを入れた場合、明らかにスペクトルの狭帯域化が図られることからレーザー共振器内で超放射モードとレーザーモードが同時発振していることを明らかにしている。

本論文では、レーザー共振器を配置した場合の発光特性を共振器内部に波長分離素子等を用いずに測定することにより、レーザー共振器を配置しない場合の発光特性と比較してその超放射特性を調べた。しかしながらレーザー共振器を配置しない場合、石英光学セルと外部空気との間の屈折率差や色素溶媒中の熱ひずみによる屈折率変化による正帰還のため自然放出に起因する純粋な超放射特性にはなっていないと考えられる。今後実験的にはこれらの点を改善することも必要であるが、有機色素は一般に帯域が広いことから正確には2準位系ではなく4準位系として取り扱う必要がある、今後これらをふまえた超放射の理論的な検討を行う必要があると考えられる。

謝辞

日頃より御指導御鞭撻頂く本校戸沢一光校長、討論して頂いた本校電気電子システム系高井秀悦講師、ミラーホルダ作成に御協力頂いた本校機械システム系成田敏明講師、並びに誘電体多層膜ミラー作成に御助言頂いた本校電気電子システム系葛西清和講師に深く謝意を表す。本研究は1部平成5年度指定研究費により行われた。

付録 レーザ光をガウシアンビームと仮定したときレーザービームが十分閉じ込められる条件について

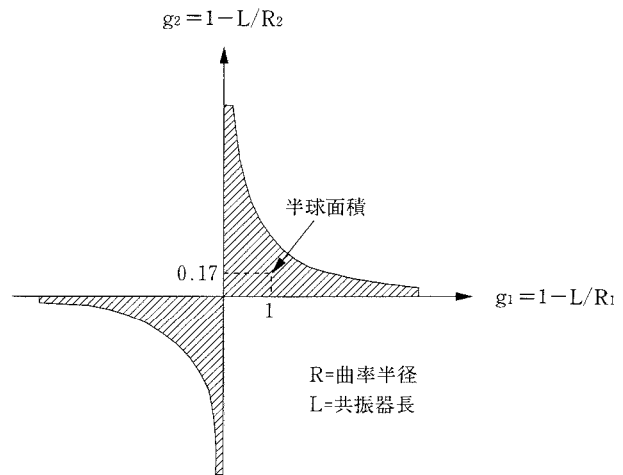
用いたレーザー共振器用ミラーの曲率半径はそれぞれ $R_1 = \infty$ と $R_2 = 12\text{cm}$ であり、共振器長 L は 10cm (一定) である。レーザー光をガウシアンビームを仮定したときレーザー共振器中でレーザービームが十分閉じ込められる条件は

$$(1 - L/R_1)(1 - L/R_2) < 1$$

であり、本システムでは上式左辺の値が0.17でありその条件に適していることがわかる。

参考文献

- (1) 片山幹郎編：“レーザー化学 (I)”，裳華房(1985)。
- (2) 矢島達夫編：“超高速光技術”，丸善(1990)。



安定性ダイアグラム

- (3) 武藤他：“N₂ レーザ励起による有機色素の超放射特性”、信学論(C)、J59-C, 3, pp.180-181(1976)。
- (4) S.L.Chin et. al.: “High Efficiency Superradiant Traveling Dye Laser”, Opt. Commun., Vol.3, p. 301 (July 1971)。
- (5) 武藤他：“薄膜エネルギー移動色素DFBレーザーにおける増幅器・発振器構成とその特性”、信学論(C)、J69-C, 12, pp.1512-1517 (1986)。
- (6) 武藤他：“混合4色素系の広帯域波長連続可変エネルギー移動色素レーザー動作”、信学論(C)、J66-C, 11, pp.859-865 (1983)。