

## ピコ秒パルスレーザー光の発生とその測定

北島 巖\*・宮永 憲明\*・佐藤 俊雄\*・岩澤 宏\*

### Generation and Measurement of Picosecond Laser Pulses.

Iwao KITAZIMA, Noriaki MIYANAGA, Toshio SATO, Hiroshi IWASAWA

(Received Apr. 15, 1976)

A train of picosecond laser pulses was obtained with the use of a self-mode-locked  $\text{Nd}^{3+}$ : glass laser, which was composed of a 15 cm long glass rod as a light amplifier, two high reflection mirrors as a cavity, and a Kodak 9860 dye cell as a saturable absorber.

The pulse width of the laser beam was observed not only by SHG enhancement method but also by TPF pattern method. In the former method, the pulse width was 15~32 p·sec with the enhancement ratio of 70~160; and in the latter, that was 5~13 p·sec with the contrast ratio of 1.3~2.5. These values appear to be very reasonable, while the difference between the former and latter values will be discussed here.

#### 1. 序 論

可飽和(吸収)色素を用いてレーザーをQスイッチ動作させることにより、同時にモード同期をかけることができる<sup>1,2)</sup>。モード同期により発生するパルス列の個々のパルスは、適切な可飽和色素を使用すれば、理論的には次式で与えられる持続時間をもつ。

$$\tau \approx \frac{1}{4\nu} \quad \dots\dots(1)$$

ここで、 $4\nu$ は発振スペクトル幅である。一般に固体レーザーでは、ピコ秒領域の光パルスを比較的容易に発生させることができる。特にスペクトル幅の広い $\text{Nd}^{3+}$ :ガラスレーザーにおいては、理論的にはサブピコ秒領域の光パルスも発振可能である。また、そのようなパルスの尖頭値はMWないしはGWにも達する。本実験ではKodak 9860可飽和色素を用いて $\text{Nd}^{3+}$ :ガラスレーザーをモード同期し、ピコ秒光パルスを発生させた。

このように非常に狭いパルス幅および高い尖頭値をもつピコ秒光パルスは、種々の分野に応用することができる。その中で物性研究への重要な応用例として、非線形光学効果や物質の光学的過渡応答の研究がある。ピコ秒光パルスは持続時間が非常に短いので、物質の状態変化・温度上昇・熱的破壊を伴うことなく、大きな入力を物質に加えることができる。またパルス1個当りのエネルギー密度が非常に高いので、物質の高密度励起や大きな非線形光学効果の測定が可能である。更にパルス幅がピコ秒程度ということから、緩和の速いラマン散乱・自己集束効果およびピコ秒域での螢光の過渡応答特性<sup>3,4)</sup>が観測でき、緩和時間の直接測定が可能となる。

さて、自己モード同期 $\text{Nd}^{3+}$ :ガラスレーザーによってピコ秒光パルスを発生させる場合、問題となるのは、その発生の再現性と安定性およびパルス幅の測定方法である。レーザー発振そのものが非線形光学現象である

\* 電子工学科

のに加えて、可飽和吸収色素を用いたモード同期動作も非線形現象であるため、系のわずかの再現性・安定性の乱れがレーザ発振条件に大きく影響することが考えられる。一方、光の検知法として従来用いられている純電気的方法では、単一現象の場合、パイプライン光電管と進行波形オシロスコープを用いてもサブナノ秒程度の過渡現象の測定が限界である。そこでピコ秒光パルス幅の測定には、非線形光学効果を利用した高調波相関法 (SHG法<sup>9)</sup>・THG法<sup>9)</sup>) および螢光相関法 (TPF法<sup>7)</sup>・3PF法<sup>8)</sup>) などの間接測定法と、ピコ秒 Kerr シャッター法<sup>9)</sup> やイメージ変換流しカメラ法<sup>10)</sup> のような直接測定法が用いられてきた。しかし、これらの方法には次のような欠点があると考えられる。

- i) データの解析が複雑である。
- ii) point by point の測定となるので実験時間が非常に長くなる。
- iii) 装置自体が高価である。
- iv) 測定に大きなレーザ出力を必要とする。

特にこのピコ秒光パルスを用いた光物性・非線形光学の実験を並行して行う場合には、iv) が問題となる。それ故、以上の欠点を避けて、将来ピコ秒光パルスに応用するためにも、本実験においては SHG-Enhancement 法<sup>11),12)</sup> と TPF 法を用いてパルス幅の測定を実施した。前者はレーザ出力の極一部を用いるだけで測定可能であり、他の非線形光学等の実験と並行して行うことができ、またパルス幅をある程度の目安をもって 1 shot 毎に推定できるという特長をもっている。後者は前者によって得られた結果の妥当性を確認するために行ったものである。

## 2. ピコ秒光パルスの発生

### 2.1 発生原理

ピコ秒光パルスの発生は、周波数領域と時間領域の2つの観点から説明することができる。周波数領域では、可飽和色素により生ずる側帯波あるいは結合波を考え、これら側帯波や結合波を媒介として同期された各モードの重ね合せとして理解する<sup>11),13)</sup>。一方、時間領域での説明とは、時間の経過とともにパルスが生長していく過程を考えるものである<sup>14)</sup>。ここでは時間領域で簡単に述べることにする。

可飽和色素は、Fig. 1-(a) に示すように、入射光強度が弱いときは、初期的な吸収があるが、ある強度(飽和強度)以上になると殆んど光を吸収せずに透明になるという特性をもっている。このような色素によってピコ秒光パルスを発生させるために、色素に対し

て次のようなことが要求される。

- i) レーザの発振波長に吸収線をもつ。
- ii) 吸収線の幅はレーザの発振スペクトル幅に等しいか、または広い。
- iii) 吸収飽和状態の回復時間(緩和時間)は、光が共振器を往復するのに要する時間よりも短い。

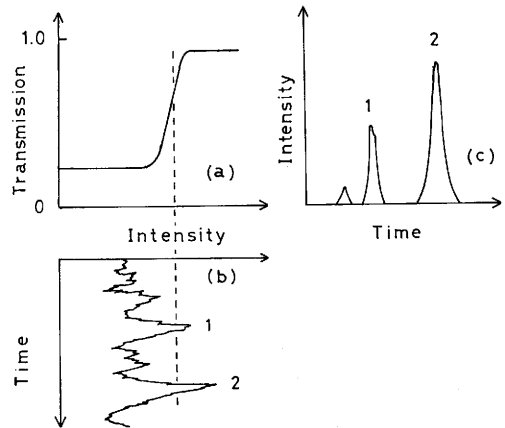


Fig. 1 Intensity selection effect of saturable dye.

- (a) Transmission characteristics of saturable dye.
- (b) Initial stimulated emission from active medium.
- (c) Transmitting light pulse.

さて、ピコ秒光パルスの発生過程は次のようなものである。Xe ランプの発光によって励起されたロッド中の活性媒質 ( $\text{Nd}^{3+}$ ) からは、先ず自然放出光が発生する。この自然放出光のうち共振器の軸方向に進む光は、長いロッド中を通る間に誘導放出光として成長する。レーザ発振の初期にこのようにして発生する誘導放出光は、Fig. 1-(b) に示すような雑音状のものである。この雑音状の光の強度分布はレーリー分布と考えられ、例えば平均値の10倍のピークが現われる時間間隔は、ガラスレーザの場合  $10^{-8}$  sec 程度である。一方、1.5m の共振器での繰返し周期は約  $10^{-8}$  sec となるので、1 周期内の強い雑音光ピークはたかだか数個である。またこの雑音光のゆらぎの平均持続時間はスペクトル幅の逆数程度である。このような雑音状の誘導放出光が弱い段階(線形段階)では色素を飽和することはできないが、活性媒質で増幅されて色素を飽和するに足る強度に達すると、色素の強度選択効果が効き始める。そして、Fig. 1 のように強度の強い部分のみが色素を透過する。この強度選択がなされる段

階は非線形段階であり、強いピークと弱いピークの強度の比は増々大きくなって行く。理想的な場合には、数個の強いピークのうちで最強のものだけが共振器中

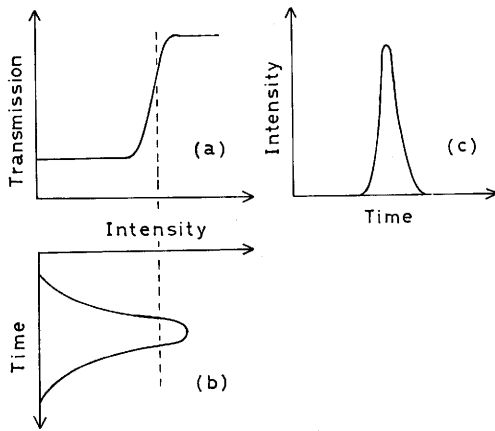


Fig. 2 Pulse width narrowing effect of saturable dye.

- (a) Transmission characteristics of saturable dye.
- (b) Incident light pulse.
- (c) Transmitting light pulse.

に残ることになる。この光パルスが共振器内を往復する間に活性媒質で増幅され、かつ可飽和色素の透過特性により、Fig. 2のようにパルス幅は狭められて行き、これらの繰返しによって段々とピコ秒光パルスに成長して行く。

## 2.2 発生装置および実験結果

ガラスレーザの共振器内に可飽和色素セルを挿入し、Qスイッチとモード同期を同時にかける、ピコ秒光パルスが発生させた。その実験系をFig. 3に示す。ロッドは10mm $\phi$  150mm $l$ のバリウム・クラウンガラス製であり、Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が3%含有されている。またモード選択作用を防ぐために両端面はブリュースタ角にカットされている。励起光源としては直線形Xeフラッシュランプを2本用いた。入力エネルギーは500~800 J程度であり、放電時間は約100 $\mu$ secに調整した。共振器は2枚のエッジ型誘電体多層膜反射鏡を用いて構成した。平行平板の反射鏡を用いなかったのは、複合共振作用によるモード選択を防ぐためである。また、出力鏡は反射率60%あるいは80%のものを用い、共振器長は1mとした。モード同期をかけるための可飽和色素としてはKodak 9860を使用し、セ

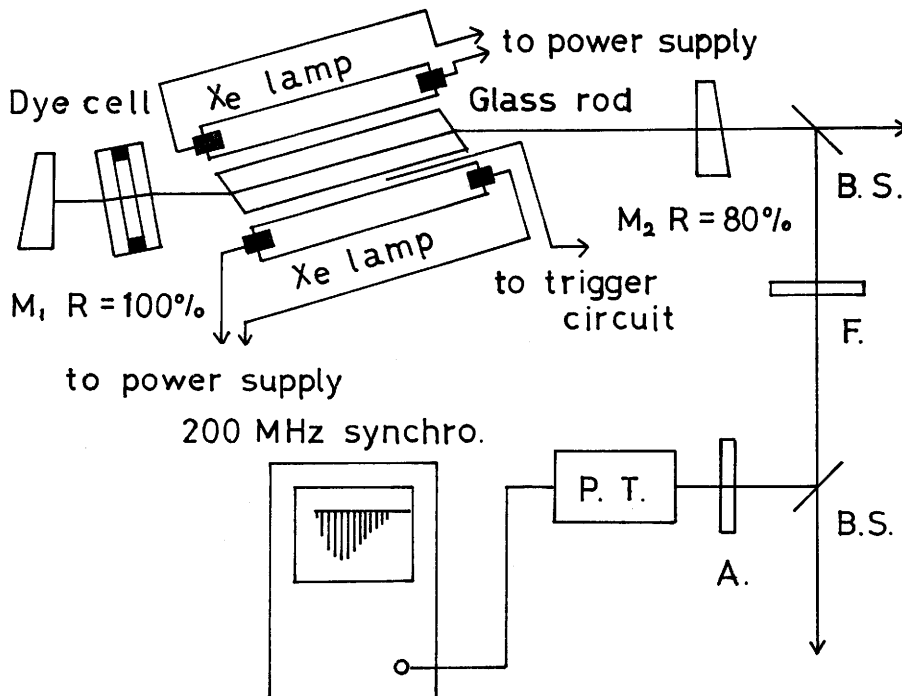


Fig. 3 Experimental setup for obtaining the picosecond laser pulse: self-modelocked Nd<sup>3+</sup>: glass laser.

ル長は 2mm, 初期透過率は60%程度に設定した。また, 色素セルによるモード選択を防止するために, 光軸に対して数度ないしはブリュースタ角でセルを固定した。

自己モード同期レーザー出力の観測には, バイプラナ光電管 R317 と 200MHz シンクロスコープを用いた。R317 の立上り時間は  $1\text{ n}\cdot\text{sec}$  以下であり, このシンクロスコープの最高掃引時間は  $1\text{ n}\cdot\text{sec}$  である。従ってこの検知系でモード同期のかかり具合はある程度の目安で観測できるので, ブラウン管上に表示された波形よりモード同期状態をモニターした。その出力波形のトレース例を Fig. 4 に示す。(a) は完全にモード同期がかかっていると思われる場合, (b) は部分的に同期されている場合, (c) は全く同期されていない (passive Q-switching) 場合のものである。

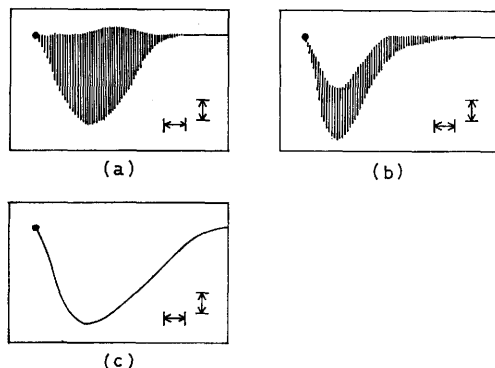


Fig. 4 Output from the self-mode-locked  $\text{Nd}^{3+}$ : glass laser. Time scale is  $100\text{ n}\cdot\text{sec}/\text{div}$ . Horizontal scale is  $0.5\text{ V}/\text{div}$ .

### 2.3 検討・考察

モード同期の状態は発振 threshold 付近で良好であったが, 入力エネルギー等の安定化を行わなかったため, 再現性が悪く, データの集積には非常に時間を要した。可飽和色素による自己モード同期レーザーを安定に発振させるためには, 種々の条件を満足させなければならないと言われている<sup>15)</sup>。それらの条件を下に記しておく。

- i)  $1/\Delta\nu \geq \tau_p$  となる可飽和色素を用いる。  
 $\Delta\nu$ : 線形領域におけるスペクトル幅  
 $\tau_p$ : 可飽和色素の緩和時間
- ii) 共振器内部の自己集束効果等の非線形効果を抑える。
- iii) 発振 threshold 付近で動作させる。

- iv) 可飽和色素を循環させる。
- v)  $\text{TEM}_{00}$  モードで発振させる。
- vi) 励起により生ずるロッドの熱歪を除去する。

ところで可飽和色素 Kodak 9860 の緩和時間は  $6 \sim 9\text{ p}\cdot\text{sec}$  であるが, 本実験に用いたガラスレーザーのスペクトル幅は約  $20\text{ \AA}$  であった。従って条件 i) は満足されていない。しかし現在のところ 9860 以上に緩和の速い色素は得られていない。自己集束効果や chirping を除去するためにはロッドや色素セル長を短くしなければならない。2.1 節で述べたような色素が可飽和に達する強いピークの数を少くして, サテライトパルスのない完全なモード同期を得るために, threshold 付近の一定入力で動作させなければならない。また可飽和色素を循環させることにより褪色性の疲労をなくし, パルス強度およびパルス列の包絡線の再現性をよくすることができる。横モードを安定化するためには, 共振器内に diaphragm を挿入することが考えられる。これら安定発振の条件, 特にサテライトパルスの発生については, 次の2つの章で更に詳しく述べられる。

## 3. SHG-Enhancement 法によるピコ秒光パルス幅の測定

### 3.1 測定原理

SHG-Enhancement 法とは, モード同期されているときと同期されていないときのレーザー光を非線形光学結晶に照射し, そのときに発生する第2高調波 (SH) 出力の増加割合 (Enhancement ratio) からパルス幅を推定する方法である。この測定法は従来, 強制内部同期の固体レーザーにおいて用いられてきたものである<sup>11), 12)</sup>。しかし, 著者等の自己モード同期レーザーにおいても, パルスの微細構造やサテライトパルスなどの影響は小さく, 有効に適用できるものと考えられる。ここで, SHG-Enhancement法の特長としては, 次のようなことが挙げられる。

- i) レーザー出力の極一部を用いるだけでパルス幅が推定でき, 他の大きなレーザーパワーを必要とする実験と並行して行える。
- ii) 1shot 毎にパルス幅が推定できる。
- iii) 測定技術が他の相関法や直接法に比べて容易である。

また欠点としては, 次のことが挙げられる。

- i) パルスの形については言及できない。
- ii) パルス列についての平均としてしかパルス幅が推定できない。

以上の特徴を考えると、SHG-Enhancement 法はある程度の目安でもってパルス幅を推定するときには有効であることが分る。

次に、Enhancement ratio  $R_e$  とパルス幅  $\tau$  の関係を導出する。レーザがモード同期されて発振するとき、可飽和色素による強度変調から発生する側帯波あるいは結合波が共振器の軸モードと殆んど一致するため同期が生じ、各モードは等しい位相をもつと考えられる。ここで簡単のために各モードの振幅は等しいと仮定する。そのようなレーザ光を KDP などの非線形光学結晶に照射した場合、発生する平均 SH 出力  $P_{2L}$  は次式で与えられる<sup>16)</sup>。

$$P_{2L} = \eta \left( \frac{2N_L^2 + 1}{3N_L} \right) P_{1L}^2 \quad \dots\dots(2)$$

またレーザがモード同期されていないときの平均 SH 出力  $P_{2U}$  は次式で表わされる<sup>17)</sup>。

$$P_{2U} = \eta \beta \left( \frac{2N_U - 1}{N_U} \right) P_{1U}^2 \quad \dots\dots(3)$$

上の2式において、 $\eta$  は SH 光の変換定数であり、 $N_U$ 、 $N_L$  および  $P_{1L}$ 、 $P_{1U}$  は各々の場合の発振モード数と入射レーザ光の平均パワーである。また  $\beta$  は発振モードの振幅分布による定数であり、等振幅のときは  $\beta = 1$  である。そこで、 $R_e$  は次式で定義される。

$$R_e = \frac{\text{SH power with mode-locking}}{\text{SH power without mode-locking}} = \left[ \left( \frac{2N_L^2 + 1}{3N_L} \right) / \beta \left( \frac{2N_U - 1}{N_U} \right) \right] \left( \frac{P_{1L}}{P_{1U}} \right)^2 \quad \dots\dots(4)$$

ここで、 $N_L = N_U = N$ 、 $\beta = 1$  と近似し、 $P_{1L} = P_{2U}$  の場合を考えると、

$$R_e = \frac{2N^2 + 1}{6N - 3} \approx \frac{N}{3} \quad (N \gg 3) \quad \dots\dots(5)$$

となる。従って完全にモード同期がかかっていると、パルス幅は、

$$\tau \approx \frac{1}{N\delta} = \frac{T}{N} \approx \frac{T}{3R_e} \quad \dots\dots(6)$$

で表わすことができる。ここで  $\delta$  は縦モード間隔であり、 $T$  はパルスの繰返し周期である。故に Enhancement ratio を測定すれば、 $\tau \approx T/3R_e$  の関係によって、パルス幅が推定できることになる。

### 3.2 測定装置

SHG-Enhancement 法によるパルス幅測定のための実験装置を Fig. 5 に示す。モード同期の状態はパイプライン光電管と 200 MHz シンクロスコープでモニタしている。レーザ光の一部をビームスプリッタによって実験系に導いた。レーザ光を KDP に入射さ

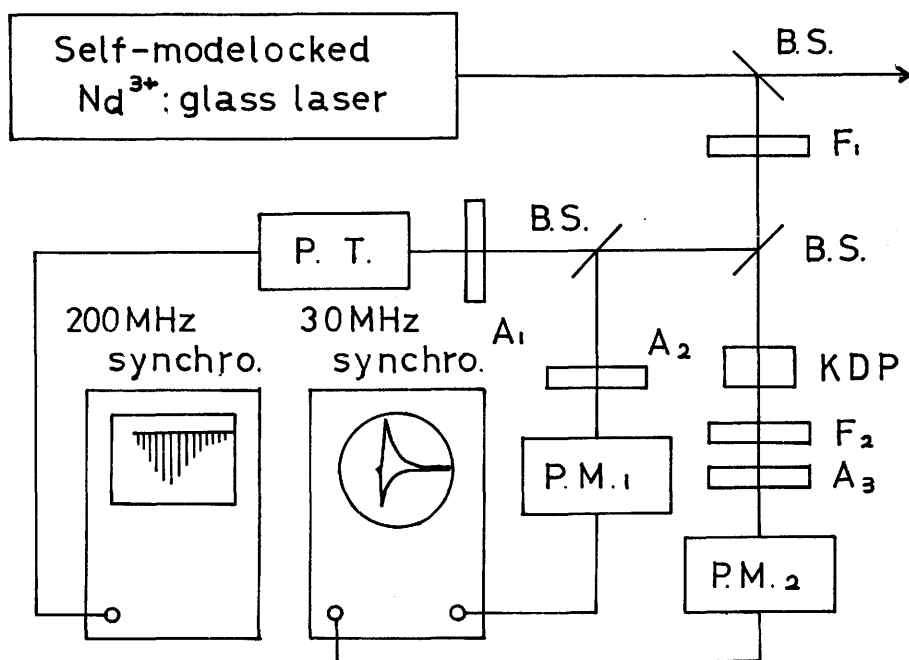


Fig. 5 Experimental setup for measuring the pulse width by means of SHG-Enhancement method.

せ、発生した SH 光を  $5300 \text{ \AA}$  の干渉フィルタ  $F_2$  と減光器  $A_3$  を通して光電子増倍管  $PM_2$  で検知し、 $PM_1$  で検知したレーザーパワーとともに 30MHz デュアルビームシンクロスコープで同時に観測した。干渉フィルタ  $F_2$  は SH 光のみを取り出すためであり、減光器  $A_1, A_2, A_3$  は各々の検知器の線形性を保つために用いた。なおレーザー光がモード同期されているときは、SH 光の強度が  $PM_2$  の飽和領域に達するため、 $PM_2$  の前に透過率10%または1%の N.D. フィルタを加えた。またモード同期されていないレーザー光としては、可飽和色素の濃度を調整して、Q スイッチのみがかかる状態にして取り出した。

ここで問題となるのは SH 出力を増大させることと、変動を少なくすることである。すなわち、SH 出力を増大させるためには結晶内で入射レーザー光と SH 光

との間で **phase-matching** をとれば良いわけであるが、そうするとレーザー光の入射角度の微妙な変動が SH 出力に大きく影響することになる<sup>18)</sup>。そこで本実験では、KDP として  $45^\circ Z$  カット ( $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}$ ) のものと  $41^\circ X$  カット ( $15 \times 15 \times 5 \text{ mm}$ ) のものを用い、Z 軸方向入射と **phase-matching** 方向入射の2つの場合について測定を行った。ただし、Z 軸方向入射の場合は、SH 出力の増大を図るために、焦点距離 70mm のレンズで KDP にレーザー光を集光した。

なお、KDP は他の非線形光学結晶と異り、 $1.06 \mu\text{m}$  付近では **phase-matching** 角が殆んど変化しないので、スペクトル幅の広いガラスレーザー光に対しても、スペクトル全域にわたってほぼ完全に **phase-matching** が満足されるものと考えられる<sup>19)</sup>。また、その場合 **phase-mismatching** が顕著に現われる結

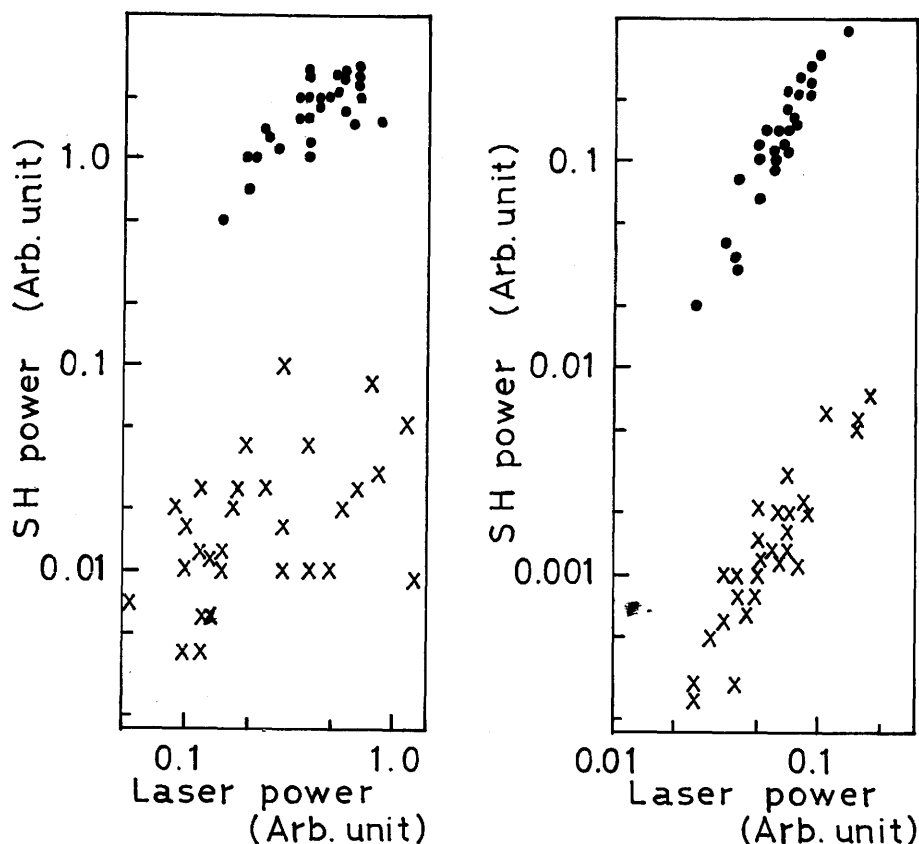


Fig. 6 Experimental results from SHG-Enhancement method : relationship between SH power and laser power in the modelocking and non-modelocking operation.

- (a) The incident direction of laser pulse is z axis.
- (b) The incident direction of laser pulse is the phase-matched direction.

晶長は、理論的に 50mm と解析されており<sup>19)</sup>、本実験では **phase-mismatching** の影響を極力避けるために結晶長は 5mm とした。

### 3.3 測定結果

レーザ出力のモード同期状態に対する SH 出力の依存性を調べた結果を Fig. 6 に示す。(a) が Z 軸方向入射の場合、(b) が **phase-matching** 方向入射の場合である。横軸に入射レーザ光の平均パワーを、縦軸に SH 光の平均パワーを、ともに相対値で示してある。モード同期の状態は前節で述べたように 200MHz シンクロスコープ上で判断したものであり、完全に同期されている場合を・印で、全く同期されていない場合を×印で表わしてある。

Fig. 6 から判断できるように、Enhancement ratio は各々の場合、

$$R_e, z \text{ axis} \quad \approx 100 \sim 200$$

$$R_e, \text{phase-matching} \approx 70 \sim 160$$

であった。これらの  $R_e$  より式(6)を用いてパルス幅を推定すると下表のようになった<sup>20)</sup>。

Table 1 Experimental results: estimated pulse width.

	Z axis	Phase-matching
$R_e$	100~200	70~160
$T$	6.7 n・sec	7.1n・sec
$\tau$	11~23 p・sec	15~32 p・sec

### 3.4 検討・考察

**phase-matching** 方向にレーザ光を入射させた場合に、Z 軸方向入射に比べてパルス幅が若干広く推定されたのは、前者の測定の際にモード同期が不完全であったためと思われる。しかしながら、**phase-matching** 方向入射の場合は、式(2)、(3)で示されるレーザパワーと SH パワーとの間の 2 乗則がほぼ満足されており、データ点のバラツキも少くなっている。これは本実験で用いた 41° x cut の KDP ではレーザ光の全スペクトル幅にわたって **phase-matching** が満されており、SH 光パルスのスペクトルおよび波形が崩れなかったものと考えられる。

また同期状態と非同期状態でのモード数を等しいと近似したことによる影響を調べるために、各々の状態でのスペクトルを測定した。しかしスペクトルの形に殆んど変化がみられず、スペクトル幅はともに約 20Å

であった。モード同期の場合にスペクトルが広がらなかったのは、同期の不完全さや可飽和色素による **spectral narrowing** のためと考えられる。また、モード選択はないので  $N_L \approx N_U$  の近似はほぼ正しいことが分った。

従って **phase-matching** を満足させた方が測定精度が向上することが分った。しかし、測定されたパルス幅がスペクトル幅 20Å から推定される  $1.5p \cdot \text{sec}$  よりかなり広がったのは、次のような原因によるものと考えられる。まずロッドの母体であるガラスによって **chirping** が生じ、実効的なスペクトル幅は 20Å にまで到っていないであろうということである。また 4 章の測定結果から確認されるようにサテライトパルスが発生しており、このサテライトパルスによってメインパルスの幅が広く推定されたと考えられる。

## 4. TPF 法によるピコ秒光パルス幅の測定

### 4.1 測定原理

TPF 法は相関測定法の一種であり、電界強度の 2 次の相関をとることによりパルス幅を測定するものである。この方法によって自己モード同期 Nd<sup>3+</sup>: ガラスレーザ光のパルス幅を測定した例としては、J. A. Giordmaine 等<sup>21)</sup> や A. J. Bradley 等<sup>22)</sup> の報告がある。この方法の特徴としては、次のことが挙げられる。

- i) 種々の相関法のうちで装置も簡単であり、測定技術も容易である。
- ii) 相関の最も強いところと相関の無い部分における蛍光強度の比、すなわちコントラスト比を測定しなければならぬ。
- iii) 1 shot 毎にパルス幅を測定できるが、大きなレーザ出力を必要とする。
- iv) 得られた相関関数 (TPF パターン) から一義的にパルス波形を決定することはできない。

次に TPF 法において重要なポイントであるコントラスト比について述べる。TPF 法はパルスの波形を直接観測するものではなく、光強度に対する 2 次の相関関数

$$G(\tau) = \int E^2(t) \cdot E^2(t+\tau) dt \quad \dots\dots\dots(7)$$

を測定するものである。このとき注意しなければならないことは、レーザ光が全く不規則な雑音状の光であっても、 $\tau$  の関数として得られるパターンはモード同期されたパルスの場合と同様なものとなることである<sup>22)</sup>。両者を区別するためには、パターンにおけるピーク値  $I_p$  とバックグラウンドの値  $I_B$  の比、つまりコ

ントラスト比

$$R_c = \frac{I_P}{I_B} \quad \dots\dots(8)$$

を正しく測定しなければならない。この値はモード同期パルスでは  $R_c = 3$ 、雑音光では  $R_c = 1.5$ 、また、

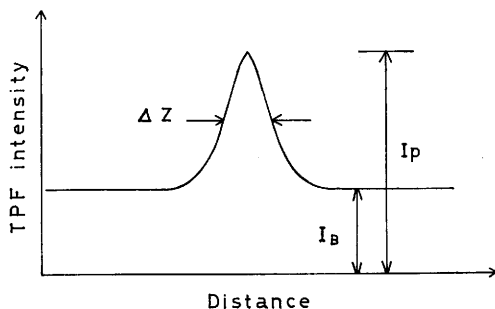


Fig. 7 TPF pattern : contrast ratio  $R_c = I_P/I_B$ , pulse width  $\tau = \Delta z \cdot n/c$ .

部分的にモード同期がかかったものでは  $R_c = 1.5 \sim 3$  となることが導びかれている<sup>22), 23)</sup>。実際のモード同期レーザーパルスは一般には完全な同期状態と雑音状態の間にある。従って TPF 法のような 2 次の相関関数だけからは、同期状態の正確な様子を知ることは困難である。またモード同期が十分にかかっていたとしても、得られた TPF パターンのコントラスト比を“3”近くにするには、精密な測定技術が要求される。

さて、TPF パターンからパルス幅は次式のようにして求められる。

$$\tau = \frac{\Delta z \cdot n}{c} \quad \dots\dots(9)$$

ここで  $\Delta z$  は TPF パターンの輝線の半値幅、 $n$  は二

光子吸収蛍光溶液の屈折率、 $c$  は光速である。

## 4.2 測定装置

本実験においては、TPF パターンの観測系として triangle 型の自己相関のものを用いた。Fig. 8 にその実験系を示す。50%反射鏡でレーザー光を 2 分し、各々 100%の反射鏡を用いて色素セル中に導いた。色素セルは入射窓  $2 \times 2$  cm、長さ 10cm のものを用い、二光子吸収 蛍光色素溶液としては Rhodamine 6 G の 1,1-Dichloroethane 溶液 ( $10^{-3}$  mol/l) を用いた。F は可視光カットフィルタ (IRD-1B) である。蛍光パターンを撮影するためのフィルムは Kodak Tri-X pan・film を使用した。このフィルムは 7000 Å 以上の光には感光しないので、 $1.06 \mu\text{m}$  のガラスレーザー光の散乱光を除去するためのフィルタは使用しなかった。

さて撮影された TPF パターンからパルス幅やコントラスト比を測定するために、フォトデンシトメータ (光度計) によって TPF パターンの黒化度を測定しなければならない。また、TPF パターンから信頼性のあるデータを得るためには、パターンの光学濃度がフィルムの H-D (Huter-Drifield) 特性曲線の直線部についていなければならない。そこで Tri-X に白色光を照射し photographic step table を製作した。そしてデンシトメータ (JMD-1A: Microphotometer, 本学設置) によって光学濃度を測定し、H-D 特性曲線を得た。なおデンシトメータのスリットは幅  $10 \sim 20 \mu\text{m}$  高さ  $200 \mu\text{m}$  に調整した。その H-D 特性曲線を Fig. 9 に示す。H-D 特性曲線の直線部において撮影されていれば、得られるコントラスト比の誤差は

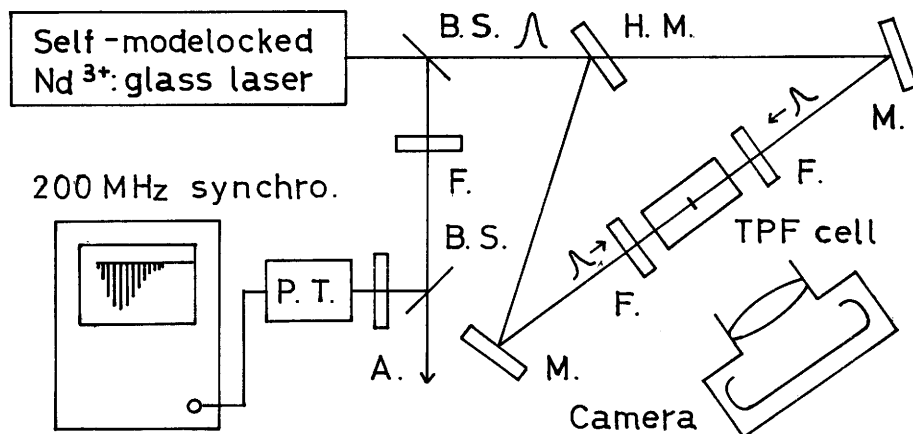


Fig. 8 Experimental setup for measuring the pulse width by means of TPF technique.



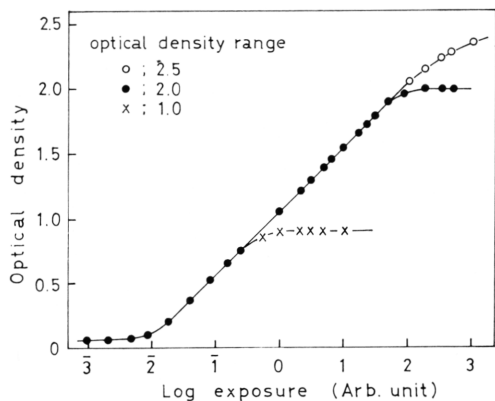


Fig. 9 H-D characteristic curve of Kodak Tri-X pan film.

10%以内であると報告されている<sup>24)</sup>。Fig. 9における左下方の平坦部はフィルムの光学カブリ領域である。右の方に飽和しているように伸びる部分は、各レンジによる装置自体の飽和によるものである。

次に TPF パターンからパルス幅・コントラスト比を得るために光学濃度を測定した。デンシトメータは H-D 特性曲線を得たときと同じに調整した。

#### 4.3 測定結果

実験において観測された典型的な TPF パターンと

そのデンシトメータトレースの4例を Fig.10 に示す。(a) はモード同期が理想的にかかっている場合のものであり、このようなパターンは本実験では多くは得られなかった。(b) はメインパルスの他にサテライトパルスが発生している場合のものである。サテライトパルスが発生する原因としては、次のようなことが考えられる。メインパルスとサテライトパルスの間隔が共振器の100%反射鏡と可飽和色素セルの距離に一致しているので、単独では可飽和色素を通過することのできない多数の弱い雑音光ピークの中で、メインパルスと色素セルで偶然出会ったものが通過してしまい、活性媒質で増幅されたものと考えられる。(c) はメインパルスおよびサテライトパルスに各々サテライトパルスが付随している場合のパターンである。メインパルスあるいはサテライトパルスとこの弱いサテライトパルスとの間隔は色素セルの入射窓の厚さに対応している。これら種々のサテライトパルスの発生を防ぐには、可飽和色素セルを100%反射鏡に密着するほか、Xe ランプの発光エネルギーを制御しなければならない。つまりサテライトパルスの発生を防ぐには発振 threshold 付近で動作させなければならない。(d) はレーザー共振器の出力鏡を平面鏡に替えた場合の TPF パターンである。平面鏡を使用することによりレーザー共振器が複合共振器となり、モード選択によって多くのサテ

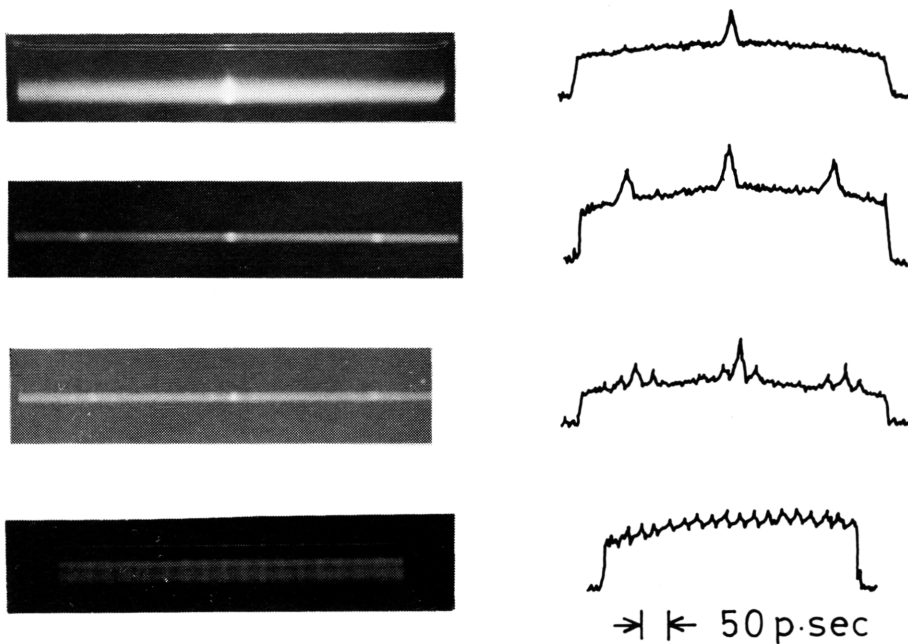


Fig. 10 Typical TPF patterns.

ライトパルスが生じたものである。パルスの間隔は平面出力鏡の厚さによく対応している。なお  $10^{-3}$  mol/l の Rhodamine 6G・1,1-Dichloroethane 溶液の  $1.06\mu\text{m}$  光に対する屈折率は、約1.38であることが (d) によって確認された。

Fig. 11 はレーザー光が断面で変化していることを示す TPF パターンである。これはロッドの励起が均一でないのと、ロッドの全断面で発振させているため、断面の各部分で発振状態が異なり、横モードが多モードで発振しているためである。これを防止するには、横モード選択器を共振器内に挿入し  $\text{TEM}_{00}$  モードで発振させればよい。Fig. 12 はバックグラウンドの光学濃

度がフィルムの光学カブリ領域にあるため、バックグラウンドと輝線の間の光学濃度は露光量に対して線形性がなくなりコントラスト比が3を超してしまったパターンの例である。

さて著者等が用いた TPF セルは長さが10cmであり、また TPF パターンを撮影する際には接写するので、カメラのピントをセルの中央に合わせてもセルの端の方ではピントがずれてくる。従ってピントのボケが TPF パターン上に現われ、光学濃度が低下することが考えられる。そのような TPF パターンの例を Fig. 13 に示す。本実験において得られた TPF パターンは殆んどこのようなパターンであった。

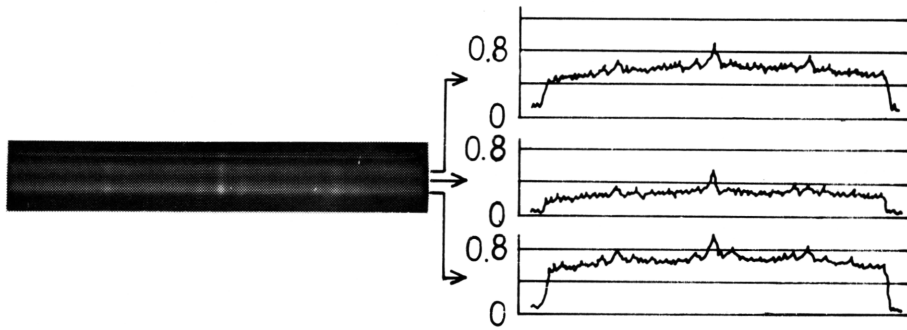


Fig. 11 TPF pattern varying in the cross section.

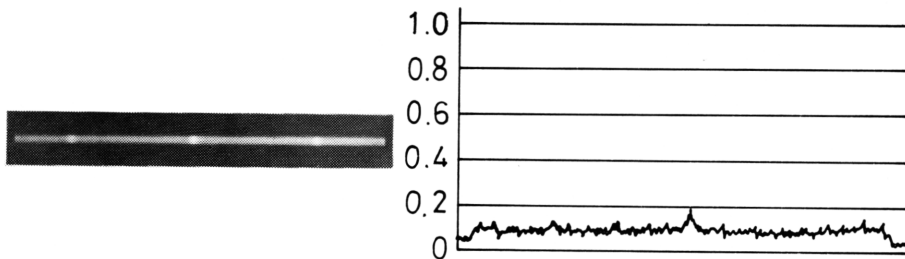


Fig. 12 TPF pattern whose contrast ratio excess 3.

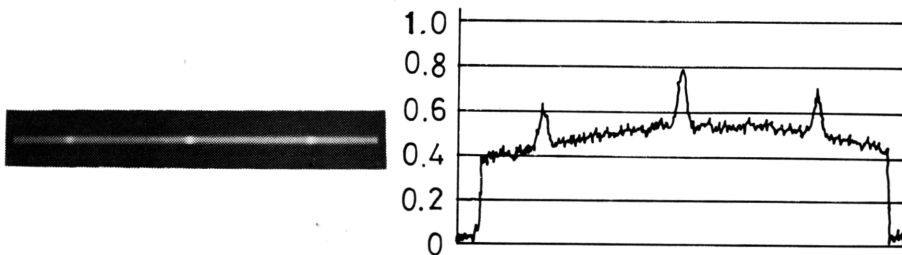


Fig. 13 TPF pattern in which the optical density of the background fall down in the both sides.

以上のような TPF パターンが数百枚得られたが、どのようなパターンならば、それから信頼し得るデータが得られるかを、次のような方法を用いて判断した。モード同期モニタ用の 200MHz シンクロスコープ上で完全に同期されていると確認されたものについて、バックグラウンドの光学濃度に対するコントラスト比の分布をとってみた。その分布図を Fig.14 に示

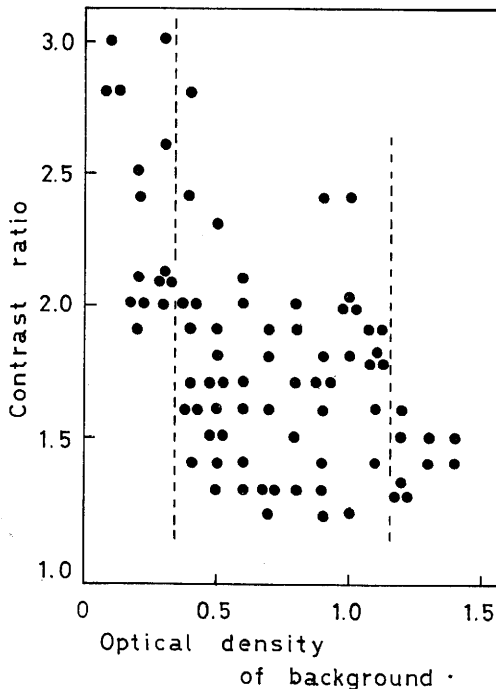


Fig. 14 Distribution of the contrast ratio concerning the optical density of the background.

す。バックグラウンドの光学濃度が 0.3 以下のものは、フィルムの光学カブリ領域であるか、また線形領域ではないので、コントラスト比は比較的高くなっている。また、バックグラウンドの光学濃度が 1.2 以上のものは、輝線部の光学濃度がデンストメータの飽和領域に入っているため、コントラスト比は比較的に低くなっている。従ってこの 2 つの領域から得られるパルス幅には信頼性がない。しかし、バックグラウンドの光学濃度が 0.3~1.2 の領域では、コントラスト比が 2 以上になる点も多くあり、モード同期も十分にかかっていると思われるので、この領域にあるデータ点ならば比較的信頼できると考えられる。この領域にあるデータ点からパルス幅の頻度分布をとると Fig.15 のようになった。結局パルス幅は 5~13p・sec の範囲に

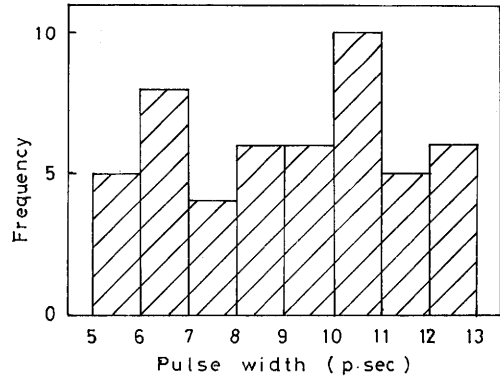


Fig. 15 Histogram showing the distribution of the pulse width.

あることが分った<sup>25)</sup>。

#### 4.4 検討・考察

本実験ではパルス幅について 5~13p・sec という値を得たが、スペクトル幅 (20Å) から推定される 1.5p・sec には達していなかった。この原因としては、モード同期が不完全であるということや、chirping が生じていることが考えられる。また得られたパルス幅が 9860 可飽和色素の緩和時間 6~9 p・sec に近いことから、9860 の緩和時間によってパルス幅が制限されていることも考えられる。すなわち、2.3 節で述べた安定発振の条件  $1/\Delta\nu \geq \tau_p$  が満足されていないためである。以上のことより得られたピコ秒パルスはさらに狭いパルスの集合であると考えられる。

本実験で得られた TPF パターンのコントラスト比が低かった原因としては、次のことが考えられる。

- i) TPF セルに導いたレーザー光の断面が太いため、接写すると、たとえ数 mm の奥行きでもピントがぼけてしまう。
- ii) 色素溶液によりレーザー光が吸収されコントラスト比が低下する。
- iii) モード同期が不完全である。

従って、TPF パターンを撮影するときは、なるべく短い色素セルを用い、正確にピントが合うように工夫しなければならない。

また、レーザーそのものについても問題があることが分った。つまり、横モードが各 shot 毎に変化し、多モード発振していることである。これには共振器内に diaphragm を挿入することにより TEM<sub>00</sub> モードで発振させる必要がある。更に特に重要なことは、発振において殆どの場合サテライトパルスが生じて

いることであるこれはとりもなおさず同期が不完全であることを意味している。従ってサテライトパルスの発生は絶対に防がなければならない。

## 5. 結 論

まず、自己モード同期  $\text{Nd}^{+3}$  : ガラスレーザによってピコ秒光パルスを発生させることができた。しかしながら、ピコ秒光パルスを物性等の研究に応用するならば、2.3節で述べた発振の安定化を行わなければならない。特にパルス幅測定の実験からサテライトパルスが発生していることが確認された。このサテライトパルスは、ピコ秒光パルスの応用上非常に有害であるので、絶対に取除く必要がある。

次に発生したピコ秒光パルスの持続時間を、SHG-Enhancement法とTPF法によって測定した。前者では  $15 \sim 32 \text{ p} \cdot \text{sec}$  (KDP:  $41^\circ \text{Xcut}$ , phase-matching方向入射), 後者では  $5 \sim 13 \text{ p} \cdot \text{sec}$  という値を得た。SHG-Enhancement法により得たパルス幅がTPF法の結果より広がった原因としては、次のようなことが考えられる。TPFパターンから判明したように、レーザ出力にはメインパルスだけでなく種々のサテライトパルスが付随している。また可飽和色素の初期透過によるバックグラウンド放射があるという報告もなされている<sup>14)</sup>。従ってこれらのサテライトパルスやバックグラウンド放射によって、メインパルスに対するパワーが大きく見積られてEnhancement ratioが低下し、パルス幅が広く推定されたものと思われる。しかし、オーダー的には両者の測定値は近いものであり、phase-matching方向にレーザ光を入射させた場合は、2乗則も満足されておりデータ点の変動も少ないので測定精度はかなり高いと考えられる。従って自己モード同期  $\text{Nd}^{3+}$  : ガラスレーザ光のパルス幅は、他の非線形光学や物性研究などの実験と並行して、SHG-Enhancement法によりある程度の目安で測定可能なことが確認された。なお、本論文の一部は別に英文で公表する<sup>26), 27)</sup>。

## 謝 辞

色素試料の吸収スペクトルの測定では、本学科第3講座(松本教授)の分光光度計を使用させていただいた。TPFパターンの解析では、本学マイクロ光度計の使用の際、石村教授にお世話になった。大阪大学工学部電気工学科山中研究室の佐々木孝友氏には、TPFパターン測定上の御助言をいただいた。ここに深く感謝の意を表す。

また本研究の遂行にあたっては、本学科第1講座配属の多数の学生、平見晴雄、大橋清、橋本修二、佐藤功、諸隈武、辻岡重夫、清水健二、佐賀信裕、山本八郎の諸君らの多大の御助力があった。ここに深く感謝の意を表す。

## 参 考 文 献

- 1) A. J. DeMaria, W. H. Glenn, M. J. Brienza, M. E. Mack, "Picosecond laser pulses," Proc. IEEE, 57 (1967) 2.
- 2) 霜田光一, "レーザの超短パルス発生とその応用" 日本物理学会誌, 25 (1970) 584.
- 3) R. R. Alfano and S. L. Shapiro, "Direct measurement of the vibrational decay of dye molecules in the excited states," Opt. Commun. 6 (1972) 98.
- 4) 宮永, 山本, 北島, 岩沢, "ピコ秒光パルス励起による蛍光寿命の測定", 物理・応用物理学会北陸支部合同講演会, C-11 (1975年12月). 山本八郎, 福井大学工学部電子工学科卒業 研究論文 (1976年3月).
- 5) J. A. Armstrong, "Measurement of picosecond laser pulse widths", Appl. Phys. Letters, 10 (1967) 16.
- 6) R. C. Eckardt and C. H. Lee, "Optical third harmonic measurements of subpicosecond light pulses" Appl. Phys. Letters, 15 (1969) 425.
- 7) J. A. Giordmaine and P. M. Rentzpis "Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses," Appl. Phys. Letters, 11 (1967) 216.
- 8) P. M. Rentzpis, C. J. Mitshele and A. C. Saxman, "Measurement of ultrashort laser pulses by three-photon fluorescence," Appl. Phys. Letters, 17 (1970) 122.
- 9) M. A. Duguay and A. T. Matlack, "Ultra-high speed photography of picosecond light pulses and echoes," Appl. Opt. 10 (1971) 2162.
- 10) M. Ya Schelev, M. C. Richardson and A. J. Alcock, "Image-converter streak camera with picosecond resolution," Appl. Phys. Letters, 18 (1971) 354.
- 11) M. DiDomenico Jr, J. E. Gusie, H. M.

- Marcos and P. G. Smith, "Generation of ultrashort optical pulses by mode-locking the YAIG:Nd laser," *Appl. Phys. Letters*, **8** (1966) 180.
- 12) R. L. Kohn and R. H. Pantell, "Second-harmonic enhancement with an internally modulated ruby laser," *Appl. Phys. Letters*, **8** (1966) 231.
- 13) 矢島達夫, "超短光パルスとその応用", 電子通信学会誌, **55** (1972) 1597.
- 14) P. G. Kryukov and V. S. Letokhov, "Fluctuation mechanism of ultrashort pulse generation by laser with saturable absorber," *IEEE J. Quant. Elect.*, **QE-8** (1972) 766.
- 15) 佐々木孝友, 小河泰輔, 山中千代衛, "ダイによるステープルモードロックとパルス幅の伸長と収縮", 電子装置研究会資料, EDD-74-77.
- 16) H. P. Weber, "Method for pulse width measurement of ultrashort light pulses generated by phaselocked lasers using nonlinear optics," *J. Appl. Phys.*, **38** (1967) 2231.
- 17) A. Askin, G. D. Boyd and J. M. Dziedzic, "Observation of continuous optical harmonic generation with gas masers," *Phys. Rev. Letters*, **11** (1963) 14.
- 18) 矢島達夫, "非線形光学実験法", 応用物理, **36** (1967) 653.
- 19) J. Comly and E. Garmire, "Second harmonic generation from short pulses," *Appl. Phys. Letters*, **12** (1968) 7.
- 20) 佐藤, 宮永, 佐賀, 北島, 岩沢, "SHG-Enhancement 法による超短光パルス幅の測定", 第35回応用物理学学会学術講演会, 9a-F-10 (1974年10月). 宮永, 山本, 北島, 岩沢, "SHG-Enhancement 法によるピコ秒光パルスの測定", 第36回応用物理学学会学術講演会, 24a-R-8 (1975年11月).
- 21) D. J. Bradley, G. H. C. New and S. J. Caughey, "Sub-picosecond structure in modelocked Nd : glass lasers," *Phys. Letters*, **30A** (1969) 79.
- 22) H. P. Weber, "Comments on the pulse width measurements with two-photon excitation of fluorescence," *Phys. Letters*, **27A** (1968) 321.
- 23) R. J. Harrach, "Effects of partial mode-locking on the contrast ratio in two-photon excitation of fluorescence," *Phys. Letters*, **28A** (1968) 393.
- 24) 国重和俊, 伊藤敏雄, "ガラスレーザのピコ秒構造", 応用特理, **33** (1970) 710.
- 25) 佐藤, 宮永, 清水, 北島, 岩沢, "ピコ秒パルスレーザ光の測定技術", 物理・応用物理学学会北陸支部合同講演会, B-7, (1974年12月).
- 26) I. Kitazima, T. Sato, N. Miyanaga and H. Iwasawa, "Picosecond pulse measurement by SHG Enhancement method," *Opt. Commun.* (投稿中)
- 27) I. Kitazima and N. Miyanaga, "Direct measurement of picosecond response in two-photon fluorescence of erythrosin dye," *Opt. Commun.* (投稿中)