OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	サブピコ秒光パルスの発生とその応用に関する研究
Author(s)	黒堀, 利夫
Citation	大阪大学, 1982, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/222
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

サブピコ秒光パルスの発生と
その応用に関する研究

昭和57年３月

黒　堀　利　夫

内　容　梗　概

本論文は、著者が大阪大学大学院工学研究科電子工学専攻博士課程に在学中、同学産業科学研究所松尾研究室において行った〝サブピコ秒光パルスの発生とその応用に関する研究〟をまとめたもので、6章から構成されている。以下、その各章について内容の概略を述べる。

第1章　序　論

本章では、まずサブピコ秒光パルスの発生と測定に関する研究の現状を概観する。特に、現在のところ唯一のサブピコ秒光パルス発生光源であるAr^+イオンレーザー励起連続発振（CW）色素レーザーについて述べる。そして本研究で行った、新しいサブピコ秒光パルス発生法および測定法の占める位置を明らかにする。次に、まさにこれから始まろうとしている段階にある、サブピコ秒光パルスの応用に関する研究の現状に触れ、本研究で行った、液相における電子励起状態の位相緩和時間の直接測定の研究成果を述べ、本研究の目的や意義を明らかにする。

第2章　連続発振色素レーザー

第3章以下の実験で用いた連続発振色素レーザーの動作条件に触れ、設計上の問題点を明らかにする。そして、CW色素レーザーに関して、レーザー材料、溶媒、励起光源等の概要を述べると共に、安定なサブピコ秒光パルス発生の要となる、ジェット・ストリーム、色素循環系、共振器構成等の諸点について検討をする。さらに、そこで得られた結果に基づいて試作したCW色素レーザー装置についての基礎実験結果を示す。

第3章　サブピコ秒光パルスの発生

前章のCW色素レーザーを用いて行ったサブピコ秒光パルス発生について述べる。まず、新しいサブピコ秒光パルス発生法として、提案した内部変調を併用した受動モード同期法、利得変調を併用した受動モード同期法ならびに混合色素による受動モード同期法について、計算機シミュレーションならびに対応する実験を行い、これらの

方法の有効性を確認しサブピコ秒光パルス発生のための実際的な動作条件を明らかにし、さらに、超短パルス化を抑制する問題点についての検討を行う。

第4章　サブピコ秒光パルスの測定

本章では、超短光パルスの強度の相関と位相までも含む相関とを、同時に、かつ分離して測定し得る新しい型の相関器について述べる。さらに、この製作した相関器が、周波数変動を含む超短光パルス観測用に有効であることを実験的に確認した。また、この相関器によって測定された超短光パルスの特性をその内部に直線的な周波数変動を含むと仮定して行った計算機シミュレーションの結果により説明することができた。

第5章　サブピコ秒光パルスの応用

サブピコ秒光パルスの応用の一例として、第3章、第4章で述べた装置を用いて行った、液相での電子励起状態での位相緩和時間の直接測定の結果を述べる。まず、提案した位相緩和時間の直接測定の基本原理を説明し、対応する計算機シミュレーションの結果を示す。さらに、この提案した方法を液相有機色素分子に適用し、その有効性を実験的に確認した。

第6章　結　　論

本研究で得られた結果を総括し、今後の問題点や課題を述べる。

サブピコ秒光パルスの発生とその応用に関する研究

目　　次

第1章　序　　論 …… 1

1－1　超短光パルスの発生と測定の概況 …… 1

1－2　超短光パルスの応用の概況 …… 3

1－3　本論文の構成 …… 3

第2章　連続発振色素レーザー …… 5

2－1　緒　　言 …… 5

2－2　連続発振色素レーザー装置 …… 5

2－2－1　動作原理 …… 5

2－2－2　装置設計上の問題点 …… 8

2－2－3　レーザー材料 …… 10

2－2－4　溶　　媒 …… 11

2－2－5　励起光源 …… 11

2－3　連続発振色素レーザーの製作と共振器構成 …… 12

2－3－1　ジェット・ストリームの問題点 …… 12

2－3－2　ジェット・ノズルの製作 …… 13

2－3－3　色素溶液循環系の製作 …… 15

2－3－4　ジェット・ストリームの評価 …… 16

2－3－5　共振器構成 …… 18

2－3－6　波長可変素子 …… 21

2－4　連続発振色素レーザーの動作 …… 23

2－5　結　　言 …… 26

第3章　サブピコ秒光パルスの発生 …… 27

3－1　緒　　言 …… 27

3－2　内部変調を併用した受動モード同期 …… 28
3－2－1　基本原理 …… 28
3－2－2　基本式と計算機シミュレーション …… 28
3－2－3　実験結果 …… 32
3－2－4　検　　討 …… 35
3－3　利得変調を併用した受動モード同期 …… 36
3－3－1　共振器構成 …… 36
3－3－2　実験結果 …… 37
3－3－3　検　　討 …… 40
3－4　混合色素による受動モード同期 …… 40
3－4－1　共振器構成 …… 40
3－4－2　混合色素の特性 …… 41
3－4－3　実験結果 …… 45
3－4－4　検　　討 …… 47
3－5　サブピコ秒光パルス発生上考慮すべき問題点 …… 47
3－6　結　　言 …… 50

第4章　サブピコ秒光パルスの測定 …… 51
4－1　緒　　言 …… 51
4－2　位相成分を含む自己相関 …… 52
4－3　計算機シミュレーション …… 54
4－4　強度・位相相関器の構成 …… 56
4－4－1　動作モード …… 56
4－4－2　スピーカーを用いた実時間モニター …… 57
4－4－3　圧電掃引装置 …… 58
4－5　実験結果 …… 59
4－5－1　干渉フリンジの観測 …… 59
4－5－2　強度・位相の相関波形 …… 61
4－5－3　検　　討 …… 65

4－6　結　　言 …… 66

第5章　サブピコ秒光パルスの応用 …… 67
5－1　緒　　言 …… 67
5－2　位相緩和時間の直接測定 …… 68
5－2－1　基本原理 …… 68
5－2－2　基本式と計算機シミュレーション …… 70
5－2－3　実験構成 …… 78
5－2－4　試　　料 …… 79
5－2－5　実験結果 …… 81
5－2－6　検　　討 …… 82
5－3　従来の結果との比較 …… 83
5－4　結　　言 …… 84

第6章　結　　論 …… 86

謝　　辞 …… 89

参考文献 …… 90

関連発表論文 …… 102

第１章　序　　論

１－１　サブピコ秒光パルスの発生と測定の概況

高速に運動したり変形、変化する物体を眼の残像効果に打ちかって、はっきりと見たいという欲望や非常に短い時間間隔を精密に測りたいという要求は、古典物理学の誕生、発展と共に絶えず続いてきた。このような時間間隔短縮の急速な進展は、レーザー誕生後６年経た１９６６年に訪れた。

１９６６年、DeMaria 等[1]は、Ndガラスレーザーに可飽和吸収体を挿入した受動モード同期によって、これまでのパルス幅を一挙に３桁も短縮した、ピコ秒光パルスを作ることに成功した。しかし、当時このような光パルスを直接観測する手段はなく、これを契機に、同年から翌年にかけて、Maier 等[2]、Armstrong[3]、Weber[4]、Giordmaine 等[5] によって、結晶中の第２高調波発生（ＳＨＧ）や、蛍光液体中の２光子蛍光（ＴＰＦ）を利用したピコ秒オーダーのパルス幅の測定法が提案され、例えば、ガラスレーザーのモード同期によって得られるパルス幅が、ピコ秒オーダーであることが実際に観測された。[3]　その後、改良されたガラスレーザーで、4ps の光パルスが得られたが、ガラスレーザーは、高速繰り返し発振が困難で、しかも出力強度の安定性が悪いために、高出力パワーを必要とする応用分野に用いられるにとどまった。引き続き、フラッシュランプ励起色素レーザーの受動モード同期により、波長可変な 2ps の光パルスが得られた[6]が、高速繰り返し発振、出力強度の安定性という点では、ガラスレーザーのそれと同様であった。しかし、両者の本質的な違いは、同調可変な連続発振色素レーザーの出現を可能にしたことにある。

１９７０年、Peterson 等[7]が、初めて Ar^+ イオンレーザー励起連続発振色素レーザーの発振に成功して以来、現在に至るまでの時間間隔短縮の発展には、目をみはるものがある。すなわち、連続発振色素レーザーの発展そのものが、時間間隔短縮の歴史と言っても過言ではない。翌年には、超音波変調器を用いた強制モード同期によって 55ps の光パルスが得られた。[8]１９７２年には、受動モード同期によって 1.5ps の光パルスも得られ、[9] また、色素溶液をセルの中を流すこれまでの方式に代り、粘性の高い色素溶液をジェット・ノズルから高速に流す方式も採用されてきた。１９７４年、初めてサブピコ秒光パルスがジェット・ストリーム方式を用いたローダミン６Ｇ

とDODCI色素による受動モード同期によって達成され[10]、翌年には、モード同期色素レーザーより発生するチャーピィングの存在した光パルスをさらに回折格子対を用いて、パルス圧縮し、0.3ps の光パルスが得られた[11]。しかし、その後、反射鏡に接して設けられたごく薄いコンタクトセルに可飽和吸収色素を流し、実効的に吸収断面積を2倍高めることにより、パルス幅 0.3ps のフーリエ変換極限値に近い光パルスが直接得られるようになった[12]。また、Diels 等は、共振器内に分散素子を入れて帯域制限することをやめ、代りに矩形状の反射特性をもつ反射鏡を用いることによりパルス幅 0.17ps を得ている[13]。さらに、彼等は、最短パルス発生の条件付近でしばしば起る出力の緩和振動に着目し、これに同期する変調を励起用CWイオンレーザーに加え、色素レーザー出力の一部を時間的に選択することによって 0.12 ps のパルスを観測した[14]。最近、Fork 等[15]は、従来のファブリペロー形の共振器構成とは異なるリング共振器構成を用いて、両方向に伝搬する光パルスの薄い可飽和吸収体中での相互作用を利用した受動モード同期法で、0.1ps を切る光パルス発生に成功した。今や、特定波長（ローダミン6G－DODCI系、600nm）についてではあるが、0.1ps を切るフェムト秒台の光パルスも得られるようになってきた。このように、連続発振色素レーザーによる最短光パルスの記録は、ほとんど受動モード同期によって達成されてきたが、これと並行して、波長同調範囲の拡大化、高出力化、安定化等を目的とした種々の発生技術も試みられてきている。その一例として、Jain 等は、モード同期イオンレーザーを用いて2台の色素レーザーを並列に励起したり[16]、さらには、シンクロナスモード同期した色素レーザーを用いて第2の色素レーザーをモード同期するなどして、2波長以上で独立に同調可能な超短光パルスを得ている[17]。今後、連続発振色素レーザーは、これらの特徴も合わせもつ超短光パルス発生源として増々発展するであろう。

また、モード同期による超短光パルス発生と並行して発展してきた、SHG法、TPF法に代表されるパルス幅測定法は、その後の実験的、理論的検討によって、間接測定であるために生じる種々の問題点も解決され、超短光パルス測定技術としての地位を確立するまでになった。また、最近の高速エレクトロニクスの発展により、サンプリングオシロスコープと高速光半導体素子を組み合わせて、時間分解能 50 ps 前後の測定ができるようになってきた。直接測定法として発展してきたストリークカメラは、時間分解能 2 ps 程度のものも市販され、実験室段階では、 0.7 ps の分解

能をもつストリークカメラも報告されている[18]が、現在の技術で、0.03 ps 程度の分解能をもつＳＨＧ相関法には、遠く及ばない。このように、時間的分解能、簡便さ、高感度等のために、このＳＨＧ法が、超短光パルス測定法として広く用いられてきたが、このＳＨＧ法によって、従来から測定されていたのは、パルスの強度の自己相関であり、内部に含まれる位相項までも含む自己相関については、ほとんど考慮されていなかった。最近、Diels 等[14], [19]は、気圧掃引による干渉計を用いて、充分に低速なパルス相互遅延変化を得て相関器を構成し、パルス内部の位相特性の観測を行っている。

１－２　サブピコ秒光パルスの応用の概況

前述したように、現在、0.1 ps を切るような光パルスが得られているものの、安定に制御できるのは、数 ps 程度でありピコ秒台の応用がやっと技術的に定着し始めたところである。一方、サブピコ秒光パルスの実際的な応用例は、殆んどなく、矢島等[20]による 10^{-14} 秒台の凝縮系における位相緩和時間の測定が唯一のものである。これは、サブピコ秒台の光パルス発生ならびに測定技術が一般に利用し得る程には、安定なものでないことによるものと考えられる。このように、サブピコ秒光パルスの応用は、まさにこれから始まろうとしている段階にあり、本研究で行った、液相での位相緩和時間の測定は、これらの応用を開拓していくものとして評価されるものである。

しかし、光波であるという性質の上に、超短時間、超高光電場、空間的短さ等の特徴を合わせもつ超短光パルスの応用は多岐にわたっており、特に、物理、化学、生物の分野における超高速緩和現象の解明をはじめとし、高密度励起状態の動的挙動、高速高精度な光計測への応用、高速大容量の光情報伝送への応用も着々と進展している。

１－３　本論文の構成

本研究は、以上述べてきたような広い応用を担う超短光パルスを取り上げ、新しい超短光パルス発生法、測定法ならびに、これらの応用を目的としたものである。

第２章では、第３章以下の実験に用いた連続発振色素レーザーの動作条件に触れると共に、設計上の問題点を明らかにする。さらに、そこで得られた結果に基づいて試作したＣＷ色素レーザー装置についての基礎実験結果を示す。

第3章では、新しいサブピコ秒光パルス発生法として、提案した内部変調を併用した受動モード同期法、利得変調を併用した受動モード同期法、混合色素による受動モード同期法について、計算機シミュレーションならびに対応する実験結果を示す。これらの提案した方法は、従来の方法に比較して、特に、超短光パルスの安定化、高出力化、同調範囲の拡大化等の特徴をもつことが示される。

第4章では、超短光パルスの強度の相関と位相までも含む相関とを、同時に、かつ分離して測定し得る新しい型の相関器について述べる。さらに、この試作した相関器が、周波数変動を含む超短光パルス観測用に有効であることを実験的に明らかにした。

第5章では、これらのサブピコ秒光パルスの応用の一例として、第3章、第4章で述べた装置を用いて行った、液相における電子励起状態の位相緩和時間の直接測定の結果を述べる。さらに、計算機シミュレーションと実験結果から、この方法の有効性を確認すると共に、ある種の色素溶液において、位相緩和時間を推定することができた。

第6章では、本論文で得られた結果を総括し、今後の問題点について言及する。

第２章　連続発振色素レーザー[11),(12),(25)]

２－１　緒　　言

連続発振色素レーザーは、その広い波長可変性のために、特に分光用レーザーとして独自の重要な地位を築いてきた。もちろんどのレーザーでも利得バンド幅内では波長可変性をもっているわけだが、その可変域が特に広いものを波長可変レーザー（tunable laser）と呼び、このほかに半導体レーザー、色中心レーザー、スピンフリップラマンレーザー等がある。その中で色素レーザーが、波長可変レーザーの代表として、最も広く実用に供されている理由は、高度のスペクトル制御技術が確立していること、近紫外から近赤外までの広い波長域で、連続発振（ＣＷ）からかなりの出力のパルス動作まで、いろいろな要求に対応できる性能をそなえていることによる。色素レーザー用の材料の種類はきわめて多く、それらがそれぞれ異なった同調域をもっているため、全体として311 nm～1285 nmという広い波長域を切れ目なく発振させることができる。[1),(2)] また、利得バンド幅が広いことにより、モード同期をかけた時のパルス幅がどのレーザーよりも狭く、最短パルス数十フェムト秒（10^{-14} s）のオーダーになることも色素レーザーの特徴の１つである。これらの特徴をもつＣＷ色素レーザーを用いて、最近では、相補的関係にある時間分解能と周波数分解能とを極限近くまで最適化した分光測定も行えるようになってきた。

本研究の課題である〝サブピコ秒光パルスの発生とその応用〟は、超短パルス性、高出力性、安定性、広帯域波長可変性をもつサブピコ秒レーザーの実現、ならびに、超高速緩和現象への応用の可能性を目的としたものであり、本論文中の実験はすべてＣＷ色素レーザーを用いて行われた。

そこで本章では、まず**２－２**で、ＣＷ色素レーザーの動作原理ならびに装置設計の指針を述べると共に、**２－３**で、試作したＣＷ色素レーザー装置各部について考察を加える。最後に、**２－４**では、試作した装置を用いた基礎実験結果を示す。

２－２　連続発振色素レーザー装置[11),(12)]

２－２－１　動作原理

色素レーザーは発振可能な有機化合物の種類がきわめて多く、現在５４６種の色

素が報告されている。[3]その中で代表的な色素であるローダミン6G（以下Rh－6Gと略す）は、発振効率が高く、耐久性等の点で広く用いられている。図2－1にRh－6Gの分子構造を示す。これからわかるように、色素分子は複数個のベンゼン環をもつCとHを中心とした多原子分子である。光領域の吸収、発光に関与する電子は、これらのうちの炭素

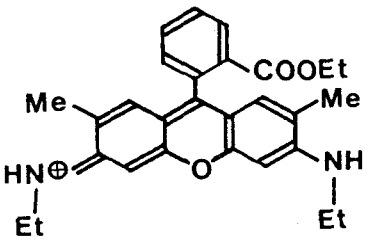

図2－1　ローダミン6Gの分子構造

原子を構成するp電子のうちの、特定の炭素原子あるいは水素原子に束縛されないいわゆるπ電子である。光子の吸収により、このπ電子が励起され、励起されたπ電子は、光を発して、あるいは熱的にエネルギーを放出して基底安定状態にもどる。この電子状態の変化に対応してあらわれるスペクトルは、さらに色素分子を構成している原子グループの振動や回転により、スペクトル幅が広げられ、重なって現われる。さらに、この色素分子が溶かされている溶媒分子との相互作用により、スペクトルはより一層広げられる。このような理由のため、原子や簡単な分子と違って色素溶液の吸収および発光スペクトルが図2－2のように非常に大きく広がるのである。上記のπ電子は偶数個あり、そのうちの最も励起されやすい2個の電子のスピンの方向が反平行か平行かによって、一重項S（singlet）電子状態と、三重項T（triplet）電子状態とに分れる。これらの様子は、エネルギー状態図であらわせ、図示すると図2－3のようになる。[4]図に示すように、色素溶液が照射されると励起一重項状態 S_1 内のある振動回転励起準位bへ、色素分子は励起され、10^{-12}s位の寿命で S_1 の振動回転基底準位Bへ、熱的にエネルギーを失いながら落ち、そこから常温では平均80％程の確率で発光して（蛍光） S_0 電子基底状態振動回転励起準位aに落ちる。この光がレーザー共振器内で増幅されてレーザー光として誘導放出される。a準位に落ちた色素分子はさらに、熱的にエネルギーを失いながら 10^{-12} s　程の速さで S_0 電子基底状態Aへ落ちる。したがって、色素レーザーはいわゆるB準位とa準位間で反転分布が生じる4準位動作のレーザーである。また、S_1 状態のB準位の寿命は一般に数 nsec と、固体レーザーのレーザー上準位の寿命 10^{-4}～10^{-1} s と比較すると大変短い。a準位の励起色素分子の一部は光を発し

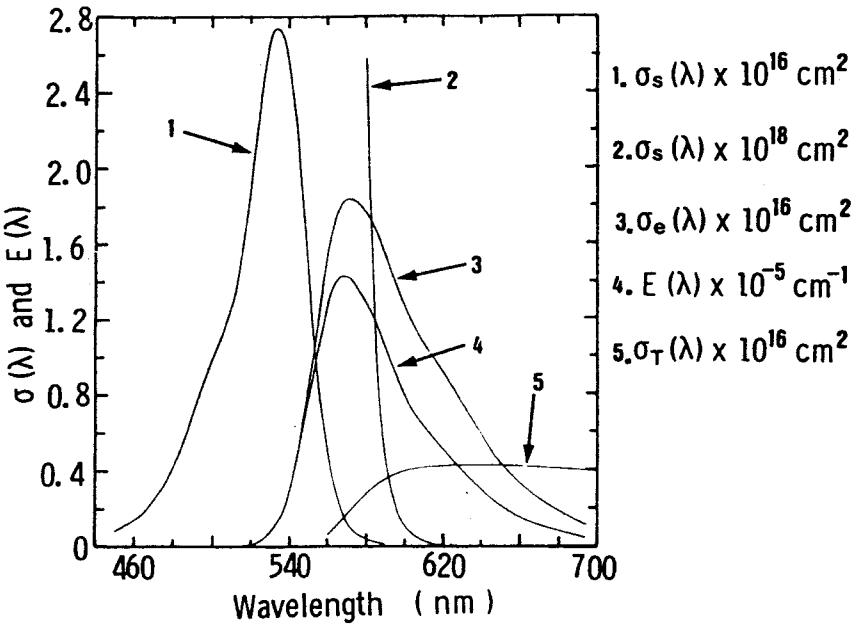

図２－２　ローダミン６GのS₀→S₁、吸収断面積σ_S、蛍光スペクトルE(λ)、T₁→T₂吸収断面積σ_T、S₁→S₀誘導放出断面積σ_e

ないで直接S₀状態へ落ちたり（内部転換と呼ぶ）、T₁電子励起状態へ行く（項間交差と呼ぶ）。図２－３では、これらの遷移確率をk_{SS}、k_{ST}で示している。このように、色素レーザーは、４準位動作の特徴をもつから、励起のしきい値は比較的低く、発振させやすい。このことからAr^+イオンレーザー等による比較的小さな励起光によっても、容易に連続発振が得られる。

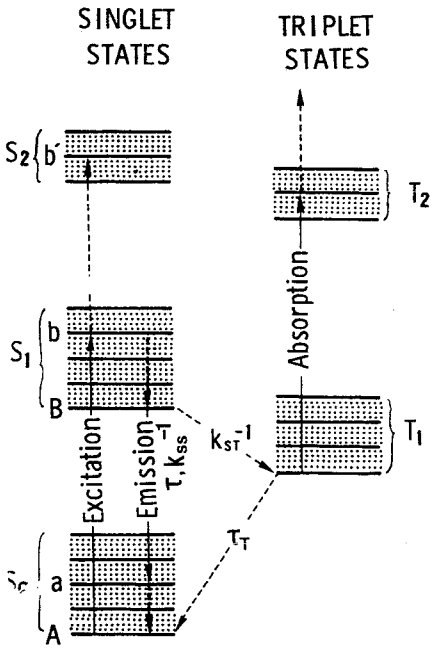

図２－３　レーザー色素のエネルギー状態図

2－2－2　装置設計上の問題点

前節で色素レーザーの動作原理を説明してきたが、動作原理は同じでも、連続発振とパルス発振の色素レーザーとでは動作条件に大きな違いがある。ここでは、2－3に述べるCW色素レーザー試作上の問題点を検討する。これらを列挙すると、次のようにまとめられる。

(1)　T_1 状態の寿命 τ_T は、スピン禁制遷移のため長く、常温で 10^{-6}～10^{-1} s であるから、T_1 状態に多くの分子がたまり、実効的にレーザー作用をさせる分子を減少させる。

(2)　さらに、T_1 状態の分子はレーザー発振光を再吸収して（T－T吸収）、T_2 電子励起状態に励起させるためレーザー出力を下げる。

(3)　励起一重項吸収 $S_1 \rightarrow S_2$, S_3……も、発振効率を下げる。

(4)　励起源は、数W程度の低入力励起である。

(5)　したがって、共振器損失を低く抑える。

こと等が考慮すべき要素となる。

これらの点を考慮して、CW発振に必要な条件をレート方程式より導き、設計、試作上の問題点を述べる。色素のエネルギー状態図は、図2－3に示したが、これに対応するレート方程式は次のようになる。[4]

$$\dot{N}_2 = W_p N_1 + (\sigma_s N_1 - \sigma_e N_2)q - N_2/\tau \qquad (2.1)$$

$$\dot{N}_T = k_{ST} N_2 - N_T/\tau_T \qquad (2.2)$$

$$\dot{q} = [(\sigma_e N_2 - \sigma_s N_1 - \sigma_T N_T)C - 1/\tau_c]q \qquad (2.3)$$

$$N_t = N_1 + N_2 + N_T \qquad (2.4)$$

ここで N_1, N_2, N_T は、それぞれ S_0, S_1, T_1 レベルの分布数を、Nt は全分子数、Wp は励起速度、k_{ST} はS→Tへの遷移確率、σ_s, σ_e, σ_T はそれぞれSレベルの吸収、放出断面積、およびTレベルの吸収断面積、qは光子数を表わす。また、τ_c は共振器寿命である。

定常状態で N_T は、式（2.2）において $\dot{N}_T = 0$ とおくと

$$N_T = k_{ST} N_{2c} \tau_T \qquad (2.5)$$

発振しきい値の分布数N_{2c}は、式（2.1）、式（2.3）から$\dot{N}_2 = \dot{q} = 0$とおき式（2.4）、式（2.5）を用いれば次式のようになる。

$$N_{2c}[1 + \sigma_a/\sigma_e - (\sigma_T - \sigma_a)k_{ST}\tau_T/\sigma_e] - \sigma_a N_t/\sigma_e - 1/\sigma_e \tau_c C = 0 \qquad (2.6)$$

式（2.6）より最低限誘導放出によるゲインがT－T吸収損失とバランスしなければならないという条件から次式の関係が得られる。

$$\tau_T \leq \sigma_e/\sigma_T k_{ST} \qquad (2.7)$$

この式（2.7）から、パルス発振では、励起速度が式（2.7）より短かい時間内であればパルス発振が得られるが、CW発振では式（2.7）を満足させるためには、(1)有効な溶媒を用いてT_1を消光するか、(2)励起部分の色素をτ_T時間よりも早い速度で循環させる必要がある。これはまた、活性媒質中に励起源によって引き起こされる光学的不均一性を除去することも意味する。

(1)の対策としては、従来、このT_1状態の緩和時間を短縮して分子の蓄積を防ぎ、発振効率を改善する目的で三重項消光剤が用いられてきている。特に、シクロオクタンテトラエン(COT)は、三重項消光剤として広く用いられてきている。T_1は準安定状態といっても、液相では溶媒分子による消光を受けるし、特に溶媒中に溶けこんだ酸素分子は効果的な三重項消光剤の役目をして、たとえば、空気中のRh－6Gのエタノール溶液のT_1の寿命τ_Tは250ns、エチレングリコール溶液のτ_Tは125nsとかなり短い値になっている。[5] また、エタノール、エチレングリコールの室温下での粘性は、それぞれ$\eta = 0.58$cp、$\eta = 20$ cp程度であり、高い粘性は、このτ_Tを低減することがわかる。またTeschke等は、種々の溶媒における$k_{ST}\tau_T$の値を測定して、[6] このことを実証した。現在、CW色素レーザーの溶媒としては、一般にエチレングリコールが用いられており、上述した三重項消光剤は用いられていない。この溶媒については、次節で詳しく述べる。したがってCW色素レーザーで特に問題となるのは、(2)の条件であるが、これは、粘性のある液体をジェット・ストリームとしてτ_Tよりも早い速度で循環させることによって

解決できる。

計算例　図２－２より$\sigma_e/\sigma_T \sim 10$、$k_{ST} \sim 10^7 sec^{-1}$とし、式(2.7)より$\tau_T \leq 10^{-6}$ sec となる。したがって、ジェット・ストリーム上のビームスポット径をｒとすると、三重項の吸収を取り除くために必要な流速ｖは、

$$v \geq r/\tau_T \qquad (2.8)$$

となり、ｒ＝10 μmとすれば、ｖ＝10m/sec となる。

２－２－３　レーザー材料

今日まで多くの人達によって数1000 種類の有機分子がレーザー媒質として適当であるかどうか調べられてきた結果、500 種以上の有機色素で、311 nm から1285 nm の波長域にわたってレーザー発振が報告されている。これ以上の発振波長の拡大は、短波長側は溶媒の吸収により、長波長側は、長い鎖を有する色素の不安定性により制限されている。[7] 連続発振は、360nm から 1095 nm の波長域で達成されている。１つの色素で発振可能な波長領域は、普通数10nmであるが、特殊なものでは、１つの色素で 176 nmにもわたって発振波長を変えた例も報告されている。[8]

色素レーザー材料の備えるべき条件は、まず第１に蛍光の量子効率が １００％に近いことであるが、それと同時に、前述した項間交差遷移確率 k_{ST} が小さく、励起三重項や励起一重項状態からの発振波長附近の吸収が小さいこと等が挙げられる。本実験では、このような点から、レーザー媒質として、キサンチン系色素であるローダミン６Ｇ (Rh－6G)ローダミンＢ (Rh－B)、可飽和吸収体としてシアニン系色素である 3,3′ diethyl oxadicarbocyanine iodide (DODCＩ)を主に用いた。これらの色素の分子構造を図２－1、図２－４

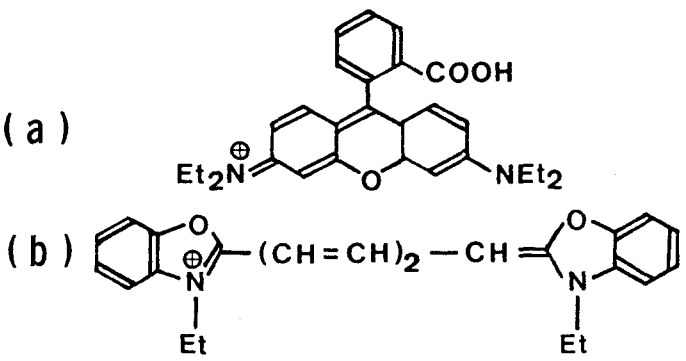

図２－４　分子構造 (a)ローダミンＢ (b) DODCＩ

に示す。

2－2－4　溶　　媒

現在、CW色素レーザーでは、Runge 等[9]によって始められた、レーザー色素あるいは、可飽和吸収体を溶媒であるエチレングリコールに溶かして、高速で循環させるジェット・ストリーム方式が広く用いられている。

一般に、ジェット・ストリーム方式を採用する場合、光学的品質の良い流れを得るためには、次のことを考慮して溶媒を選ぶことが必要である。

(1)粘性が高いこと、(2)化学的に安定であること、(3)透明度が高いこと、(4)腐蝕性がないこと等である。

これらの条件を満足するものとして、種々の溶媒が検討されてきたが、Runge 等も指摘しているように、エチレングリコールが現在のところ最適な溶媒である。この粘性の高いエチレングリコール(η＝20 cp) の使用の利点とは、ノズルの不均一性によって作られる表面波の減衰の効果、あるいは三重項の population を低減すること等であり、このことは Teschke 等[6]により実験的に確かめられている。しかしながら、このような条件で溶媒の選択をすると、ベンジールアルコール、エチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリンおよびこれらの混合等と高級アルコールに限定され、色素に対して、必ずしも最適な量子効率が与えられるとは限らない。これらの欠点を補うために、Leutwyler 等[10]は、粘性を上げる添加剤の使用によって、水に添加剤としてポリビニールアルコールを加えることにより、高い安定性で、高出力が得られることを報告している。

2－2－5　励起光源

色素レーザーは、色素蒸気を電子ビームで励起して発振させた例を除けば、すべて光励起方式である。通常CW色素レーザーの励起源としては、Ar^+ イオンレーザーや Kr^+ イオンレーザーが用いられている。Ar^+ レーザーは、紫外 333.6 nm から可視 528.7 nm 域で 15 本程度の発振線を有し、また、Kr^+ レーザーも、紫外 337.5 nm から赤外 676.4 nm 域で Ar^+ レーザーと同程度の発振線を有する。これらの内、特に強い発振線は、Ar^+ レーザーで、514.5 nm (緑)、488.0 nm

（青）、Kr^+ レーザーで 647.1nm（赤）である。本実験では、レーザー媒質としてローダミン6G（吸収ピーク530nm付近）を用いているので、これに対して効率よい励起光源として Ar^+ レーザーの 514.5nm を用いた。使用した Ar^+ レーザーは、Spectra Physics 社、Model 164－05であり、全ライン出力5W、514.5nm の単一ラインで2Wのものである。この Ar^+ レーザーの性能は、安定性 ±0.5%、ビーム径 1.25mm、ビーム発散角 0.69mrad 等である。市販品として出力2W～40W程度のものがある。また、第3章で述べるが、Ar^+ レーザーに超音波変調器を用いて共振器長に合う周波数で損失変調をかけることにより、容易にパルス幅100～200psのモード同期パルス列が得られる。

2－3　連続発振色素レーザーの製作と共振器構成[11], [12]

2－3－1　ジェット・ストリームの問題点

1972年、Runge 等[9] は、通常の色素セルでは、Ar^+ レーザーの励起強度が 1 MW/cm^2 以上と高くなると、セル表面での汚れによる破損や高速で溶液を流す時、破損の恐れがあることや局所的なヒーティング、ブリュースター角に配置した時集光されたレーザービームに対する収差、そして望ましい光学的特性を有する薄いセルは作りにくい等の問題があること等から、CW色素レーザーにセルを用いることを断念し、初めてジェット・ストリーム方式を用いた。このジェット・ストリーム方式では、ストリームの厚さの変動が新たに問題となるが、この点は高い粘性の溶媒を最適な流速で流した薄いジェット・ストリームを使用することにより低減されることが明らかにされてきている。

ジェット・ストリーム方式は、色素セルを用いるものと異なり励起強度が高くなった時でも破損するという恐れはない。しかもセル使用の場合に比較して構造も簡単である。しかしながら、有用なジェット・ストリームを得ようとするといくつかの問題点に出くわす。例えば、ジェット・ストリームの厚さ、流速、溶媒（特に粘性）等は任意には選ぶことができない。最適な流速 v とジェット・ストリームの厚さ d は無関係なものではなく、R を Reynolds 数、溶媒の密度を ρ、粘性を η として、

$$R = \rho v d/\eta < 30 \sim 200 \qquad (2.9)$$

を目安に決められる。一例としてジェット・ストリームの厚さ d＝0.3 mm、溶媒にエチレングリコールを使うとして粘性η＝20 cp（室温）、密度ρ＝1.11g/cm^3、Reynolds数 R＝100 なら流速は v≒6 m/sec となる。ジェット・ストリームの厚さを 0.2 mm 以下にすると充分な励起パワーを吸収するためには、Rh－6Gの濃度を高める必要がある。通常、Rh－6Gの濃度は、2.0×10^{-3} Mを越えると濃度による消光を生じることになる。そこでジェット・ストリームの厚さとしては 0.2～0.3 mm 程度がよい。

次に、ジェット・ストリームに温度勾配等による光学的歪を生ずることなく注入できる最大の励起パワーの目安としては、次式が与えられている。[13]

$$|\Delta n_{max}| = \sqrt{2}\,\alpha P\gamma\,(\sqrt{\pi} w_f \rho c v_{max})^{-1} |dn/dT| \qquad (2.10)$$

ここで

$|\Delta n_{max}|$：屈折率の最大変化 、 P：Gaussian励起パワー 、

α：熱エネルギーとしてジェット・ストリーム中に注入される割合、

γ：溶媒の吸収係数 、 C：比熱、 ρ：密度 、 w_f：ジェット・ストリーム中の最小スポット径 、 $|dn/dT|$：屈折率の熱係数

等である。

2－3－2　ジェット・ノズルの製作

ここでは、CW色素レーザー装置で使用したジェット・ノズルの製作法について述べる。Runge等[9]もジェット・ノズルの形状について報告しているが、ここでは光学的に質の良い流れの得られた、スリット状ノズルとリボン状ノズルについてそれらの作り方の手順を述べる。一般に、CW色素レーザー用のジェット・ストリームは励起光であるAr^+レーザーならびに発振光もパワー密度を高めるためにジェット・ストリーム上で数10μm 程度に絞り込んで使うので、ごく狭い面積を使うこととなり、広い範囲にわたる光学的良質さについてはあまり問題にならない。

まずスリット状ノズルは、図2－5に示すようなもので、外径 6 mmϕ、内径 4 mmϕの真鍮のパイプに 30×20×5 mm の真鍮のブロックを取り付け、そのブロック面にカミソリの刃（Schick Super Stainless Injector、凹凸 1μm 程度）を

エポキシ樹脂系接着剤（アラルダイト・ラピット）で接着しネジ留めしたものである。スリットの間隔、平行度等の調整は、投影器（倍率100倍）で見ながら行った。

次にリボン状ノズルは、図２－６に示すように円筒の筒先を押しつぶしてU字形に丸みをもたせたものである。使用材料として著者は、銅、真鍮、ステンレスパイプ等を試みたが、加工のしやすさ、出来上り具合から銅パイプが最も具合がいいようである。用いた銅パイプは、外径3.2㎜ϕ、内径2.3㎜ϕのものである。以下、その製作手順を図２－７を参照して述べる。

(1) 銅パイプを４cm程度の長さにし、端面を紙ヤスリ（No.1000～3000）で磨く。(図２－7(a))

(2) フライス盤で中央に、幅0.64㎜、深さ２～４㎜程度の溝を作り、その部分を紙ヤスリおよびアルミナ・パウダー(No.2000)で磨く。(図２－7(b))

(3) 次に、アセトン溶液に入れ、超音波洗浄を行ない小さなゴミを取る。

(4) 出来た溝に、磨いた銅板（厚さ0.5㎜、これは溝の幅よりも少し小さいものが良い）を挿入

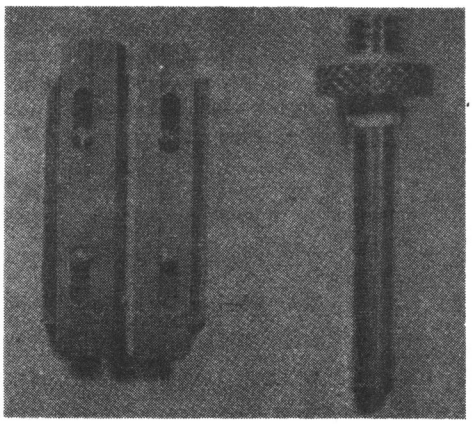

図２－５　スリット状ノズル

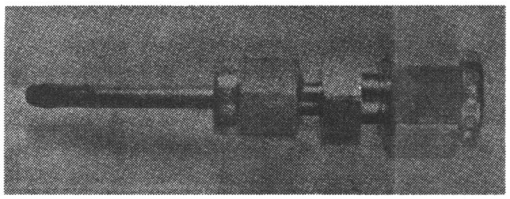

図２－６　リボン状ノズル

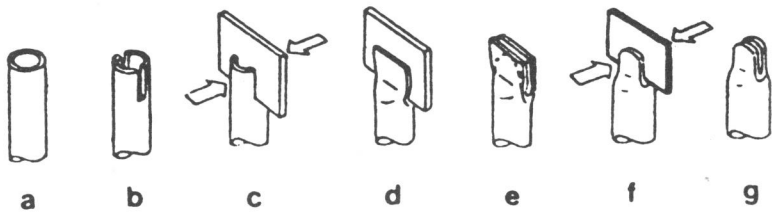

図２－７　ジェット・ノズルの製作手順

し、バイスで絞めつける。(図２－7(c))

(5) 絞めつけたままの状態で、細かな目のヤスリで先端をゆるやかに円孤状に仕上げ、そして紙ヤスリ(No.1000～3000)およびアルミナ・パウダー(No.2000)等で円孤面を磨く。(図２－7(d),(e))

(6) 挿入した銅板を取り去り、(3)の操作を行う。

(7) ステンレスのカミソリの刃(Schick Super Stainless Injector, Hi－Stainless, 各々の厚さ 0.25㎜, 0.10㎜)を組み合わせて、望むジェット・ストリームの厚さにして、バイスで絞めつける。(図２－7(f))

(8) カミソリの刃を取り除いた後、40～60 分間(室温)程度、配線パターン加工用エッチング液に浸し、水洗いした後、(3)の操作を行う。(図２－7(g))

以上が、リボン状ノズル製作の手順である。特に、(8)の操作を行うことでジェット・ストリームの光学的性質がかなり改善される。さらに、このジェット・ノズルは着脱可能なジョイントによって循環用ホースに取り付けられる。

２－３－３　色素溶液循環系の製作

ジェット・ノズルと同様、重要なものに循環系がある。いくらよいノズルでも、この循環系が悪いとレーザー動作に障害を起こす。特に循環系で問題となるのは、循環用のポンプの選定と、高速で流れるジェット・ストリームの受け口で、これらの設計、製作が適当でないと、泡の混入、流れの不安定等に悩まされることとなる。

ポンプとしては、混入する微小なゴミ等を取り除くためのフィルター(孔径7 μm)を挿入するので、まずここに１kg/cm^{2}以上の差圧がかかることや、ノズル断面積、前述の流速等を勘定して少なくとも耐圧４～５kg/cm^{2}程度のものが必要である。特に、この意味では、ギアポンプがいいようである。また振動、コンパクトさ、騒音等についての考慮も必要である。現在Micro Pump社 Type１２－４１－３０３、Tuthill Pump社 Model 9012 を用いている。後者は、上の条件を満足すると共に、スピード可変(10000 R.P.M.)であり実験用には、非常に便利であった。

次にジェット・ストリームの受け口の問題であるが、これは、図２－８に示すように内径２㎝程度のポリエチレンホースのふちに、突入するジェット・ストリームを沿わすように導き入れ、さらに、そのホースの先端をリザーバーの内壁に近づけ

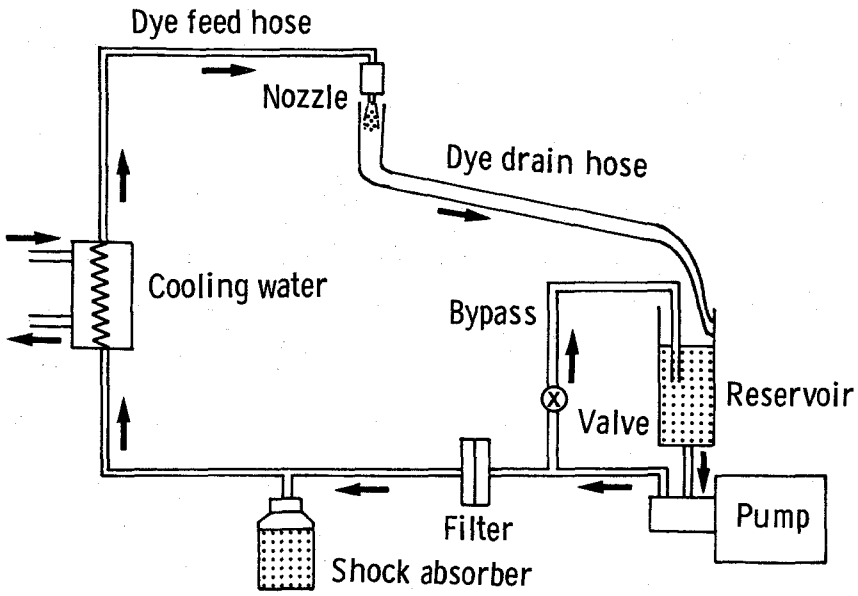

図2－8　　色　素　循　環　系

て、流れがやわらかに壁に当るようにし、その後、液はリザーバーの内壁に沿ってリザーバー液面に流入する。この様に運動エネルギーを徐々にそぎ、かつ壁面に沿わして液面に流入させることにより泡の発生を抑えることができる。また、ポンプや励起光等による溶媒の温度上昇を防ぎ、粘性を保つ意味で途中に、低温バスサーキュレーター（Neslab,model RTE－8）を挿入し、その液温を15.0±0.1℃程度に水冷した。さらに、ポンプの脈動による液圧のゆらぎの防止のために、ショック・アブソーバーを挿入している。各流出、流入端子や異径ホース接続用ジョイントとして、Swagelok社のものを用いた。このジョイントは、接続が簡単で高圧に耐える点で推められる。色素循環用ホースは、異径ホースによる不連続点での反射波、乱流の生成などを防ぐために、なるべく同径のホースを使用した。

2－3－4　ジェット・ストリームの評価

2－3－2，2－3－3でノズルおよび循環系の作り方について述べてきた。ここでは、これらを用いて、ジェット・ストリームの流れの評価を行った。ジェット・ノズルの製作のところでは、スリット状ノズルと、リボン状ノズルの両方について述

べた。しかし、スリット状ノズルの方は、実際に使ってみると刃先にかなりの圧力がかかるせいか刃こぼれを生じ（大きいもので5 μm程度）長寿命とは言いがたいものであった。そこで以後、リボン状ノズルの方の実験結果だけについて述べる。

簡単な流れの評価として、ジェット・ストリームを通しての歪みの観測とHe−Ne光のジェット・ストリームへのレンズの絞りこみ照射による透過光の変形度等の観測を行った。製作したノズルの歪の評価の一例を図2－9に示すが、この程度無歪のものは通常メーカー製品に取り付けられているものよりはるかに優れている。また、実際にレーザー発振を行い出力特性を調べた。測定には、太陽電池（負荷抵抗200Ω）を接続し、この時定数に対して充分な帯域をもつオシロスコープで観測した。その時の相対的な出力安定度の一例を図2－10に示す。気泡あるいは流速と励起強度がアンバランスであ

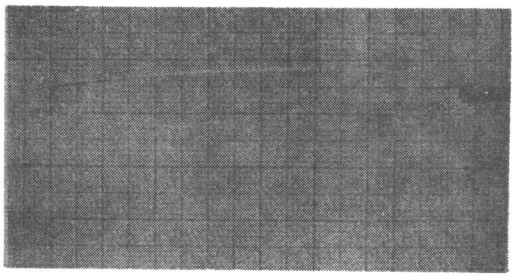

図2－9　ジェット・ストリームの光学的均一性の評価

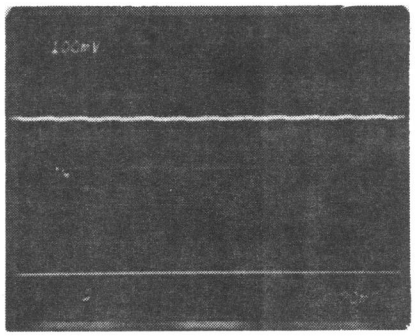

図2－10 色素レーザーのCWパワーのゆらぎの測定　時間軸：20ms／div，

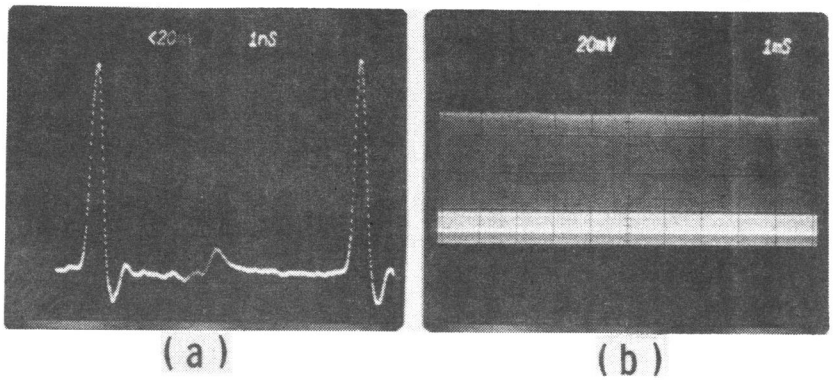

図2－11　サンプリングオシロスコープ上のモード同期波形
(a)時間軸：1hs／div.　(b)時間軸：1ms／div.

ると熱効果のために出力特性にかなり大きなダーク・スパイクが生じる。また、このノズルを用いて色素レーザーにモード同期をかけた時の時間波形の一例を図２－１１に示すが、これも非常に安定なものであった。

２－３－５　共振器構成

ここでは、超短光パルス発生に適した共振器構成について考察する。まず、一般的なＣＷ色素レーザーに使用されるいくつかの共振器構成を図２－１２に示す。(a)はＣＷ発振が初めて実現された時の基振器構成で[14]、図に示すように平面鏡と球面鏡（r＝4.55 ㎜ ）の２ミラー構成であった。この方式では、共振器長が短かすぎて波長可変素子が挿入できず、このままで、共振器長を３０cm位まで長くすると、励起ビームとレーザー光のモード整合をとる上でミラー調整が精密さ（～1 μm）を要し安定度が悪くなるので実用上不利である。この点を緩和し、その内部に波長可変素子、変調素子が挿入でき、その長さを任意に選べるようにしたのが、図2－12(b)に示すような球面鏡による反射型ミラー方式[15]である。図中、レーザー媒質あるいは可飽和吸収体色素は、図－９に示したジェットストリームとして流している。

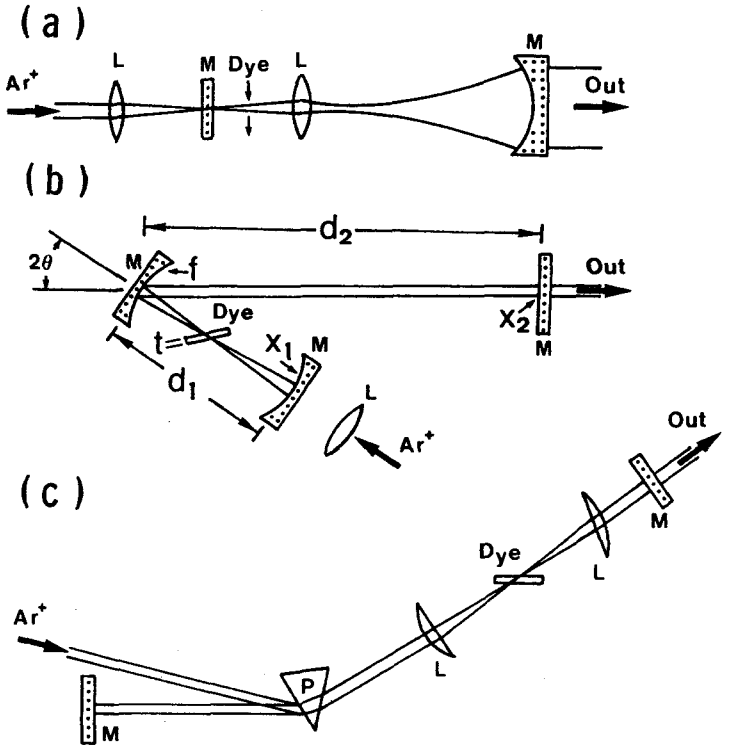

図２－１２　基本的なＣＷ色素レーザーの共振器構成
(a)２ミラー構成　(b)反射型３ミラー構成
(c)透過型２ミラー構成

この方式では、(1)図２－１２(b)に示した共振器長 d_1, d_2 の変化に対するビーム広がりは、２ミラー構成程クリティカルでない。(2)また、f, x_1, x_2 を適当に選んで共振器長を長くすることができ、光学素子を自由に組み込める。(3)後述するように透過型にくらべ、レンズによる反射、バルク損失、分散による影響等もないので、ＣＷモード同期によるサブピコ秒光パルス発生に有利である。(4)励起光（つまり Ar^+ レーザー）の注入方法も種々可能である。しかし、この共振器構成では、レーザービームと球面鏡の中心軸とは、２θの角度を作るので、ジェット面でいわゆる斜め入射による非点収差、コマ収差等の収差が生じる。これによって、励起入力の増大やビームの歪みが起こるのでＣＷ色素レーザーでは重要である。この点に関しては、ジェット面をブリュスター角に配置したときに生じる収差とうまく組み合わせて非点収差を補正することができ、その時の関係式は式（2.11）で与えられる。[15]

$$2Nt = 2f\sin\theta\tan\theta \equiv R\sin\theta\tan\theta \qquad (2.11)$$

ここで

$$N = (n^2 - 1)\sqrt{n^2 + 1} / n^4 \qquad (2.12)$$

n：媒質の屈折率

R：中央球面鏡の曲率半径である。

図２－13に式（2.11）で与えられるθ曲線、式（2.12）で与えられるN曲線を示す。

数値例

エチレングリコールをジェット・ストリームとして使用する場合、その屈折率nは、２０℃でn＝

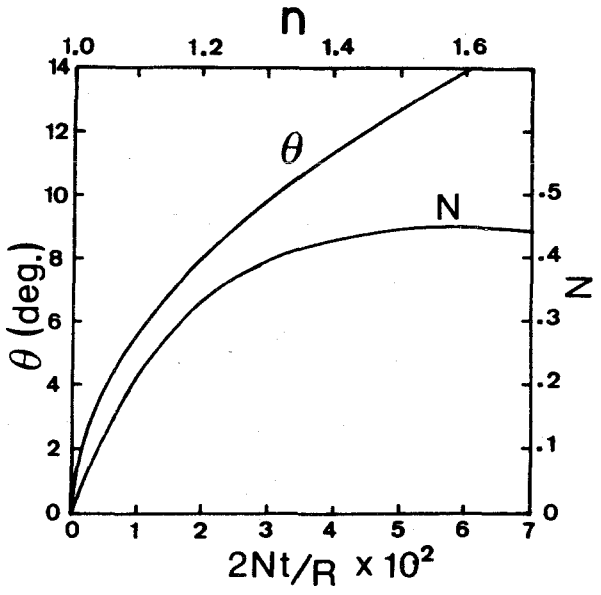

図２－13　式（2.11）、式（2.12）のθ、N曲線

1.43であり、またジェット・ストリームの厚さ t = 200μmとし、球面鏡の曲率半径R = 5cmとすれば、式(2.10)、式(2.11)から θ=3.4° となる。

次に、図2－12(c)は、(b)に対応する方式の透過型共振器構成[16]である。色素セルのブリュースター角による非点収差をARコートしたレンズ系で補正してある。Rh－6Gの場合、励起しきい値パワー40mW、変換効率30%、単一モードでも20%、出力400mWが得られている。スペクトル幅も＜1MHz が色素セルを用いて得られているので、目的によっては、有効な共振器構成である。

次に、本研究の目的の1つであるサブピコ秒光パルス発生に適した共振器構成を図2－14に示す。図2－12(b)の3ミラー共振器構成もこれに含まれる。図2－14(a)は、レーザー媒質と可飽和吸収体を1本のジェット・ストリームとし、共振器のほぼ中心にこれを置くもので、4ミラーで構成されている。これは、図2－12(b)の3ミラー構成と比較して、対称性がよくなるので、球面収差、コマ収差による損失も小さくなり、発振効率が上がる。また、パルスが等間隔でジェット・ストリーム中を通過するので、安定なモード同期パルスが得られたという報告[17]もある。図2－14(b)、(c)は、レーザー媒質と可飽和吸収体を分離した構成であり、これは

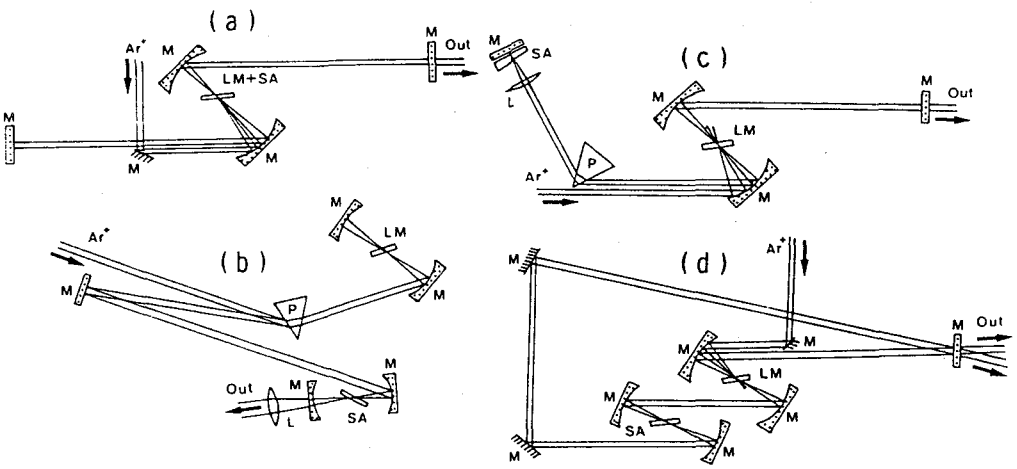

図2－14　超短光パルス発生に適した共振器構成　LM：レーザー媒質
SA：可飽和吸収体，M：ミラー，L：レンズ，P：プリズム

(a)に比較して光学素子等が増えるが、それぞれの媒質に対して別々に集光条件等のパラメータを変えられるという利点をもつ。さらに、色素の劣化も(a)のように混合した場合に比べて小さい。次に、(d)はこれまでのファブリペロー型の共振器構成とは異なるリング状共振器構成である。この方式は、単一モードでの出力パワーが大きく、さらに両方向に伝搬するパルスを薄い可飽和吸収体のジェット・ストリーム（厚さ 10 μm）中での相互作用を利用することにより超短光パルスが発生でき、現在、最小パルス幅 90 fsの光パルスは、この方式で実現されている。[18]

以上、超短光パルス発生に適した共振器構成について述べてきたが、超短光パルス発生の観点だけから考えると、これらの共振器構成の優劣はつけ難く、全ての共振器構成でサブピコ秒台の光パルス発生の報告がなされている。しかし、今後フェムト秒台の光パルス発生を考える場合、共振器構成としては、共振器内部から分散性媒質を極力排除した図2－12(b)、図2－14(a)、(d) 等が適している。参考までにこれらの共振器構成を用いて、これまでに報告されている最短パルスは、図2－12(b)、図2－14(a)で 0.12 ps[19],[20] 、 図2－14(b)、(c)で 0.3 ps [21],[22] 、(d)で 0.09 ps[18] 等である。

2－3－6　波長可変素子

色素レーザーを紫外域から赤外域の間の任意の波長で発振させるには、まず数百種類のレーザー色素から、適切な色素を選ぶことが必要である。次に、溶媒とその色素溶液濃度およびレーザー共振器のQの選択により、希望する波長で、できるだけ大きいレーザー出力が得られるようにする。さらに、発振線幅をより狭くし、かつ波長を効率よく変える方法として、レーザー共振器中に各種の波長可変素子を用いるものがある。

主な波長可変素子としては、(1)回折格子、(2)プリズム、(3)エタロン（ファブリペロー・フィルター）、(4)複屈折フィルター、(5)音響光学フィルターなどがあるが、損失が大きいものはCW色素レーザーでは使えないので制限される。ここでは、(4)がCW色素レーザーでは、特に有用なので簡単に取り上げる。

この複屈折フィルターの特徴は、(1)共振器中にそのまま入れてもアライメントがくずれない。(2)波長の同調がブリュースター角に配置したまま回転してできる。

(3)サブピコ秒程度の光パルスの波長の同調では分散効果も無視できないので、充分薄くできるこの方法は有利である。(4)厚さの異なる結晶板を組み合わせて適当なスペクトル幅が得られること等である。

一般に、水晶、方解石などの結晶は、光学的に異方性を示し、光学軸と光の進行方向とを含む面に垂直な電気ベクトルをもつ常光線と、面に平行な電気ベクトルをもつ異常光線とでは異なった屈折率を示す。このような結晶に光学軸以外の方向から光が入射すると、光は常光線と異常光線に分かれ、それぞれ異なった位相速度で結晶中を伝搬する。複屈折フィルターの中で広く用いられているリオ・フィルターは、このような軸性結晶の性質を利用したものである。

このリオ・フィルターは、通常、数枚の厚さの異なる複屈折結晶板を組み合わせて用いられている。この場合、最も薄い結晶板（厚さｄ）が、透過スペクトルのバンド間隔 $\triangle\nu_{FSR}$（FSR：フリー・スペクトル・レンジ）

$$\Delta\nu_{FSR} = C/(n_e - n_o)d \qquad (2.13)$$

を決め、最も厚い板が透過バンド幅を決める。ここで n_e, n_o は、それぞれ異常光線、常光線の屈折率である。本実験でも、このリオ・フィルターを用いて波長の同調を行った。用いたリオ・フィルターは、Spectra Physics 社製Model 573 Bである。このフィルターは、厚さの異なる３枚組で構成されている。厚さの比は、１：４：16 であり、最も薄いもので 350μmである。この時のスペクトル線幅は、３枚組で～40GHz 、２枚組で～200GHz、１枚で～1000GHz 程度である。したがって、最も薄いフィルターだけを用いるとその帯域の逆数程度のパルス幅（～１ps 程度）が発生できる。また、帯域を制限してしまうので、発振スペクトルの移動が抑制され安定な光パルスが得られるという利点をもつ。

この方法は、簡単で、光強度に対する損傷に強く、かつ素子の挿入損失が小さく、共振器のわずかな不調整や振動に対しても、波長および出力の安定度が大変よい。したがって挿入損失に対し非常に敏感なＣＷ色素レーザー等の粗同調には最適である。

2－4　連続発振色素レーザーの動作 [12],[25]

前節で、CW色素レーザー装置の要となるジェット・ノズルおよび色素循環系について述べた。ここでは、試作したこれらの装置を用いて行った、CW色素レーザーの基本的動作について述べる。

実験に用いた共振器構成を図２－15 に示す。(a)は、折れ曲がり３枚ミラー構成、(b)は、Z型の４枚ミラー構成である。用いた集光用凹面ミラーM_1、M_2、M_3 は、波長$\lambda = 450 \sim 650$ nmで反射率100％、曲率半径Rは、それぞれ$R_{M1} = 5$ cm、$R_{M2} = 5$ cm、$R_{M3} = 10$ cm のものである。出力用ミラーM_4 は、波長$\lambda = 600$nm付近で反射率99.0％、またM_5 は反射率100％の平面ミラーである。励起光であるAr^+ レーザーは、レンズ（焦点距離 f ＝５cm）で図２－９に示したようなジェット・ストリーム上に集光される。発振調整上注意すべきことは、励起光のビーム・ウェストと色素レーザーの発振ビーム・ウェストの位置、ならびにその大きさを一致させることである。ナイフエッジ法で[23],[24] これらのビーム・ウェスト径を測定したところ、どちらも～15 μm程度に絞られていた。また、位置については、これらのミラー、レンズはすべてマイクロメーター付微動装置に取り付けられており、これらの微調により、CW色素レーザーからの出力パワーが最大になるように調整した。また、図２－12(b)に示した。ふれ角2θは～7°、Ar^+レーザーを～15°で入射させた時の発振しきい値は100 mW前後であった。用いたジェット・ストリームは、厚さ200μm～300μmのものであり、ブリュースター角（55.7°）に配置した。また、ジェット・ストリームの流速は、～10 m/s 程度である。またレーザー媒質であるRh－6Gの濃度は、200μmの

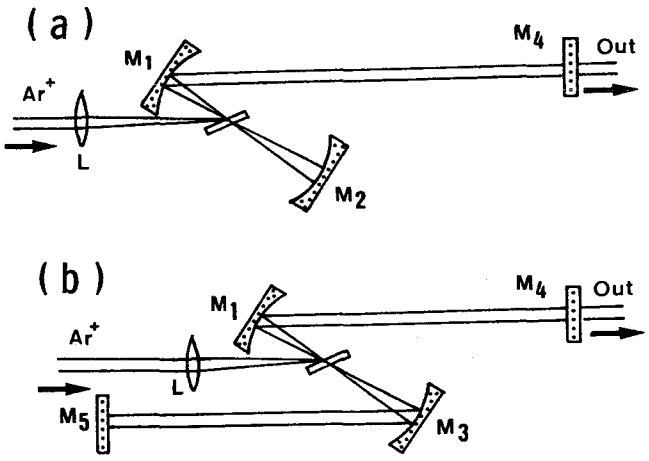

図２－15　実験に用いた共振器構成
(a)３ミラー構成　(b)４ミラー構成

ジェット・ストリームで 2.0×10^{-3}Mであり、これは、ほぼAr^{+}レーザーの 514.5nmの励起波長に対して、3%の透過率を示す濃度に対応する。このCW色素レーザーの入出力特性を図2−16に示す。励起波長は、Ar^{+}レーザーの強い発振線であるλ＝514.5nm、λ＝488.0nmを用いた。Rh−6Gの吸収ピークは、530nm付近であり、λ＝488.0nmでは、そのピークからかなりずれるために、しきい値パワーが514.5 nmに比べてかなり上昇している。この測定では、ミラー、レンズの調整が不充分なため、しきい値パワーは450mW程度であった。これから、変換効率は6%程度であるが、最適条件では、20%程度が得られた。以後の実験では、励起光として波長514.5nmを用いた。

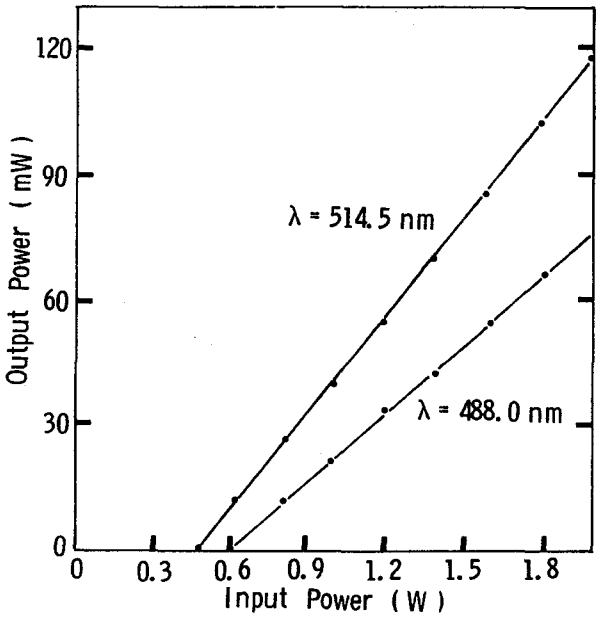

図2 − 16　CW色素レーザーの入出力特性

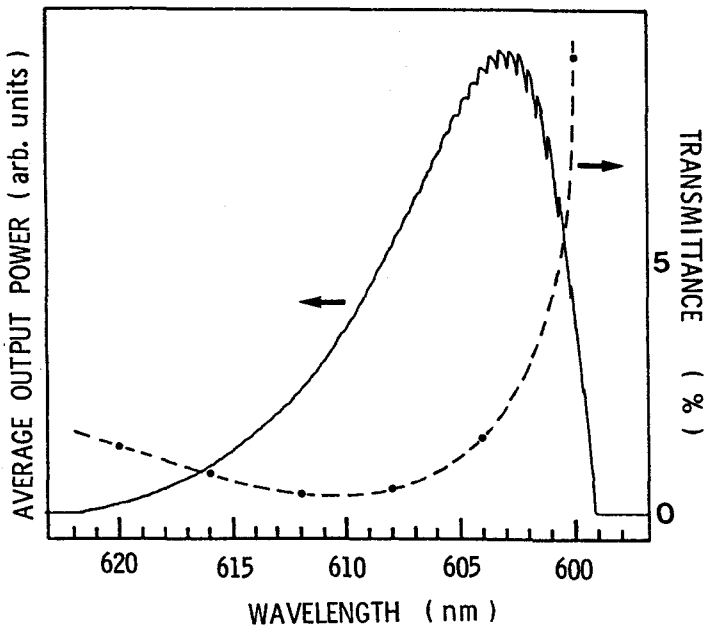

図2 − 17　ミラーの透過率特性と平均パワー出力

次に、ＣＷ色素レーザーの発振波長は、レーザー媒質の濃度、励起パワーでも少しは変化するが、特に、共振器を構成しているミラーの反射率特性によって大きな変化を示す。図２－１７は、共振器中に２－３－６で述べたリオ・フィルターを挿入し、それをモーターで回転させながら同調を行った時の、波長に対する平均パワー出力を示している。図中、点線は、用いたミラーの透過率特性を示している。次に、調整上注意すべき点として、共振器中に平行面を有する素子がある場合、これらの表裏面のビームの多重干渉効果によって、干渉パターンが乱されることである。また、この干渉パターンの歪は、励起パワーと共振器内の損失とのアンバランス、ミラーの不充分な調整により、単一モード動作をしていないことが原因でも起こる。[25] この様子を図２－１８ に示した。これは、第４章で述べるスピーカーを用いた実時間モニターで観

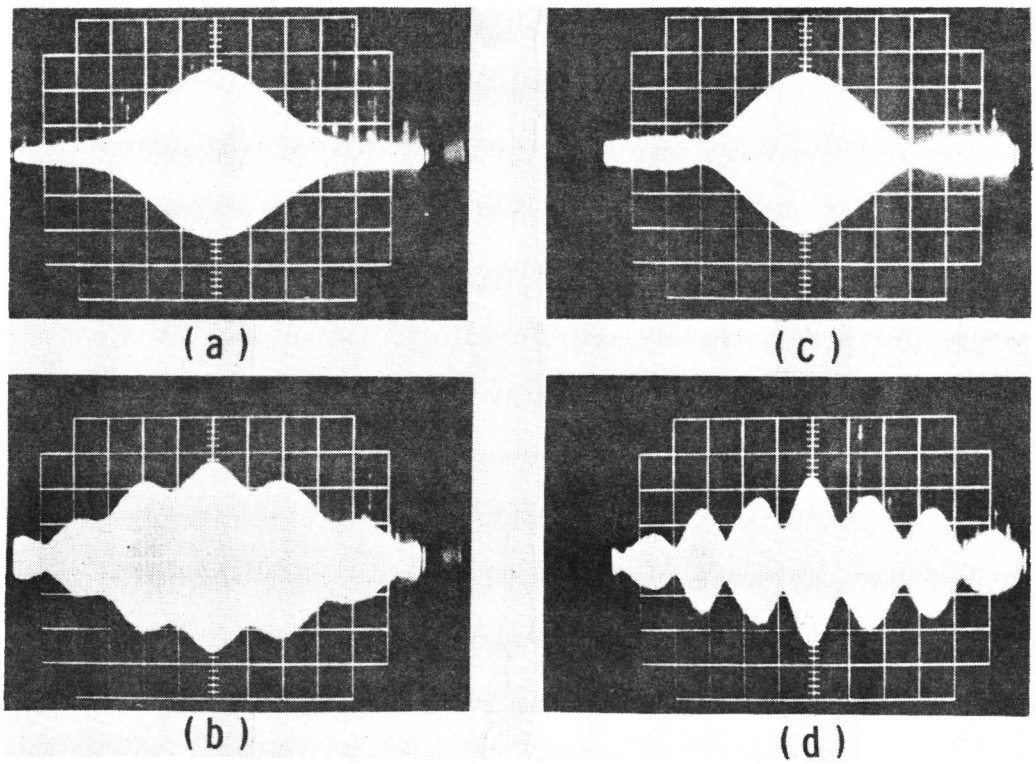

図２－１８　実時間モニターにより得られるCW動作時の１次の自己相関波形
(a)正常時　(b)～(d)干渉波形上に一種の変調が混入している場合

測したＣＷ動作時の電界の１次の相関波形、つまり干渉パターンを示したものである。[26] (a)は、正常時、(b)~(d)は、これらの原因で、干渉パターンに一種の変調が生じている場合に相当する。このような変調は、サブピコ秒光パルス発生には、不利となるのでこのようなことにも調整上充分な注意を必要とする。

２－５　結　　言

本章では、まず、本研究を遂行するにあたり実験装置として用いたＣＷ色素レーザー装置の要となるジェット・ノズルおよび色素循環系の製作について述べた。さらにサブピコ秒光パルス発生に適した共振器構成について検討した。この試作したＣＷ色素レーザーを用いた基礎的実験を２－４で述べた。本章で得られた結果は、次のようにまとめることができる。

(1)　ＣＷ色素レーザー装置設計上の指針を明らかにした。

(2)　製作したジェット・ノズル、色素循環系は、短期ならびに長期的安定度の優れたものであることが示された。

(3)　サブピコ秒光パルス発生に適した共振器構成についての検討を行うと共に、発振動作上重要となる要素を実験的に明らかにした。

以上の結果から、試作したＣＷ色素レーザーは、安定な動作をすることが確認でき、この装置を第３章以下の実験で用いる基盤を確立できた。

第３章　サブピコ秒光パルスの発生[3],[8],[9],[20],[26]

３－１　緒　　言

１９７４年、ＣＷ色素レーザーからのサブピコ秒光パルスの発生が、初めて報告[1]されて以来、その理論的検討や実験的改善によって、年々そのパルス幅は着実に短縮され、最近では、0.0９ｐｓ（９０ｆｓ）を得る[2]までに至った。このようなパルスの短縮の努力と共に、安定化[3][4]、高出力化[1],[5]、広域波長可変化[6]等の工夫もなされてきており、ＣＷ色素レーザーは、これらを兼ね具えた実用的なサブピコ秒光源になりつつある。とはいっても、勿論、高性能な光源が市販品で簡単に手に入る状態には程遠く、研究者の絶えざる努力と工夫が要求される段階にある。

一般にレーザー発振のスペクトルは多数の縦モードから成り立っている。モード同期法はこれらの縦モード間の位相を揃え、位相の揃った多数の縦モードの重ね合せにより超短光パルスを発生させる方法である。モード同期法は、共振器外部から変調を加える強制モード同期法とレーザー共振器内のレーザー媒質あるいは可飽和吸収体等の非線形性を利用した受動モード同期法とに大別される。

パルス波形が滑らかで微細構造をもたず、また位相変調を伴わないパルスは高信頼度、高精度の実験の際にしばしば必要とされる。パルスのパルス幅（半値全幅、ＦＷＨＭ）をΔt_pとし、スペクトル幅（ＦＷＨＭ）を$\Delta\nu$とすると、パルス幅とスペクトル幅の積が最小の光パルス（例えばガウス型では、$\Delta t_p \cdot \Delta\nu = 0.441$、$\mathrm{sech}^2$型では、$\Delta t_p \cdot \Delta\nu = 0.315$）[7],[8]は、フーリエ変換極限パルス（ＴＬＰ）と呼ばれている。モード同期法はフーリエ変換の極限としてこのようなＴＬＰの光パルスを得るのに適している。

本章では、第２章で述べた、試作したＣＷ色素レーザーを用いて行ったサブピコ秒光パルスの発生について述べている。前述した、受動モード同期法ならびに強制モード同期法を基盤にして、まず、３－２では、超短光パルス発生法として、提案した、内部変調を併用した受動モード同期法について、この方法の計算機シミュレーションの結果ならびに対応する実験結果について述べる。次に、３－３では、内部変調を併用した受動モード同期法から発展させた、利得変調を併用した受動モード同期法について、対応する実験結果を示す。さらに、３－４では、受動モード同期法の延長上に

ある、提案した混合色素による受動モード同期法について、この方法を確立するまでの経過と対応する実験結果を示す。最後に、3－5では、これらの実験で得られた光パルス発生のための実際的な動作条件を明らかにすると共に、超短光パルス短縮化を抑制する問題点等についての検討を行う。

3－2　内部変調を併用した受動モード同期[3]、[9]、[10]、[11]、[12]、[13]

3－2－1　基　本　原　理

従来、超短光パルスの発生は、主に可飽和吸収体を用いた受動モード同期によって達成されてきた。しかしながら、Nd：ガラスレーザーや色素レーザーのような広い利得幅をもつレーザーに対しては、この利得幅利用効率は低く、特に色素に対しては、まだ充分な余地を残している。この利得幅利用効率を改善するためには、共振器中のモード同期パルスの周回毎に、充分な反転分布を蓄積することが必要である。色素レーザーのように反転分布の回復時間とモード同期パルスの周回時間とがほぼ同程度になるようなレーザーにおいては、周回毎の利得媒質中での充分な反転分布を得るためには、励起レベルを上げると共に、共振器長を長くする必要がある。[14] しかしながら、強励起レベルで、しかも長共振器長の動作条件で可飽和吸収体による受動モード同期法だけを用いると、1周回中に多数のパルスが発生し、これは、周回毎の充分な反転分布の蓄積を阻害することになる。

そこで、このパルス分裂を防ぎ、利得幅利用効率のよい超短光パルスを得る目的で、内部変調を併用した受動モード同期法を提案した。以下に、提案した方法に対する計算機シミュレーションの結果、ならびに、この方法の有効性を示すために行った実験結果について検討をする。

3－2－2　基本式と計算機シミュレーション

レーザーのモード同期を時間領域で取り扱うのに、これを多数のモードに展開して、それらを時間的に追跡していく方法は、モード数が多い場合実際的ではない。この場合、レーザー媒質を伝搬線路とみて、これを伝搬する進行波を、時間・空間について、追跡していく方法が実際的である。この時両方向に伝搬する進行波を許すことは問題を複雑にするので、以下に用いるモデルでは、図3－1に示すように、

レーザー共振器をリング状とし、適当なアイソレータ等を挿入して、レーザー媒質内を一方向にだけ進行波が伝搬するものと仮定した。

ところで、モード同期で問題となるパルスの速さは、レーザー媒質の分極（位相）の緩和時間$T_2(\fallingdotseq 2(\Delta\omega)^{-1})$に近いものが予想

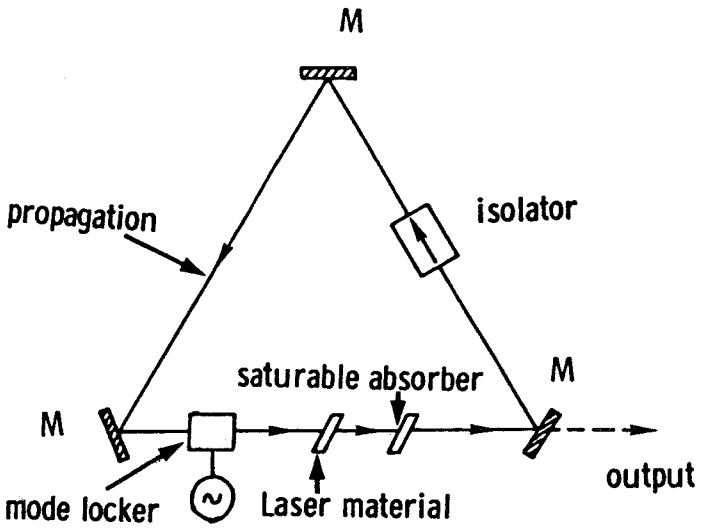

図３－１　時間領域でのレーザーのモード同期解析の基本モデル

される。つまり、その周波数スペクトルがレーザー媒質の利得幅$\Delta\omega$程度にまで広がることが予想される。この様な速い変化を含む光に対するレーザー媒質の応答はいわゆるレート方程式近似ではまかないきれない。そこでレーザー媒質の方は、量子力学的に扱い、これを密度行列の手法でマクロな分極Ｐと反転分布Ｎに結びつけるということになる。そして、このＰ、Ｎに対する光の電界Ｅの影響は、相互作用を含む密度行列の運動方程式から導かれ、一方Ｅに対するＰの影響は Maxwell の方程式から導かれる。[15] さらに、各変数を

$$y = Y(t)\exp[i(\omega t - kz)] + C.C. \qquad (3.1)$$

のごとく、ゆっくり変化する包絡線の部分Y(t)と、光の周波数での波動の伝搬の部分とに分けて表わし（ただし、Ｎはωの変動分を含まないのでN(t)の部分だけとする）、時間・空間的なY(t)の変化割合が、ωやｋに比べてはるかに小さいという、いわゆる“ゆっくりと変化する包絡線近似”を用いる。その結果、ゆっくりと変化する変数Ｙ（＝Ｐ、Ｎ、Ｅ）について次のような式が導かれる[16]、[17]。

$$(\partial P/\partial T) + P + i(\Omega - \Omega_0)P = EN$$

$$(\partial N/\partial T) + PN = \Gamma[1 + \lambda - \lambda Re(PE^*)] \qquad (3.2)$$

$$(\partial E/\partial Z) = K(P - E)$$

ただし、ここでP、N、Eは、それぞれのゆっくりと変化する部分を、上式の定常解（CW解）によって規格化して、改めてP、N、Eと定義したものである。また媒質は均一な広がりをもつ二準位系であるとしている。式中のパラメータは$\Omega = \omega T_2$、$\Omega_0 = \omega_0 T_2$、$\Gamma = T_2/T_1$、$K = T_2/T_C$の関係で結ばれている。ここで、T_1：反転分布（エネルギー）の緩和時間、T_2：分極（位相）の緩和時間、T_C：電界の緩和時間、ω_0：遷移中心周波数、またλは励起パラメーターである。式中のT、Zは、実時間t、実距離zに対して、$T = (t - z/c)/T_2$、$Z = z/c\,T_2$ 等と規格化してある。cは媒質中の位相速度である。

次に、レーザー媒質、可飽和吸収体（以後SAと略す）とも式（3.2）で扱い、その間をEの伝搬で結合し、計算機シミュレーションを行った。用いたパラメータは、レーザー媒質であるローダミン6Gのジェット・ストリームをAr^+レーザーで励起したとし、可飽和吸収体としてDODCIを用いた通常の受動モード同期の標準的な値とした。計算に用いたパラメータは実際の物理量と次の関係で結ばれている。

共振器長：$L = 30cT_2$、濃度パラメータ$\lambda_{SA} = -1 - cT_2 \varepsilon d (\ln 10)/2K$

ここで、ε：モル吸光係数（l／M・cm）、d：モル濃度（M／l）である。

以上のパラメータは受動モード同期に対してであるが、一方、強制モード同期には次の様なパラメータを用いた。つまり、計算に用いた強制AM変調の透過係数は、

$$M(t) = 1 - \alpha(1 + \cos\omega_m t) \qquad (3.3)$$

であり、変調角周波数 ω_m は

$$\omega_m = 2\pi(1 + \delta)/L_o \qquad (3.4)$$

で与えられるとした。ここでα：変調の深さ、δ：離調度を示す。これらの式を用

いて、強制モード同期、受動モード同期、これらを同時に用いた、内部変調を併用した受動モード同期法の計算機シミュレーションの結果の一例を図３－２に示す。

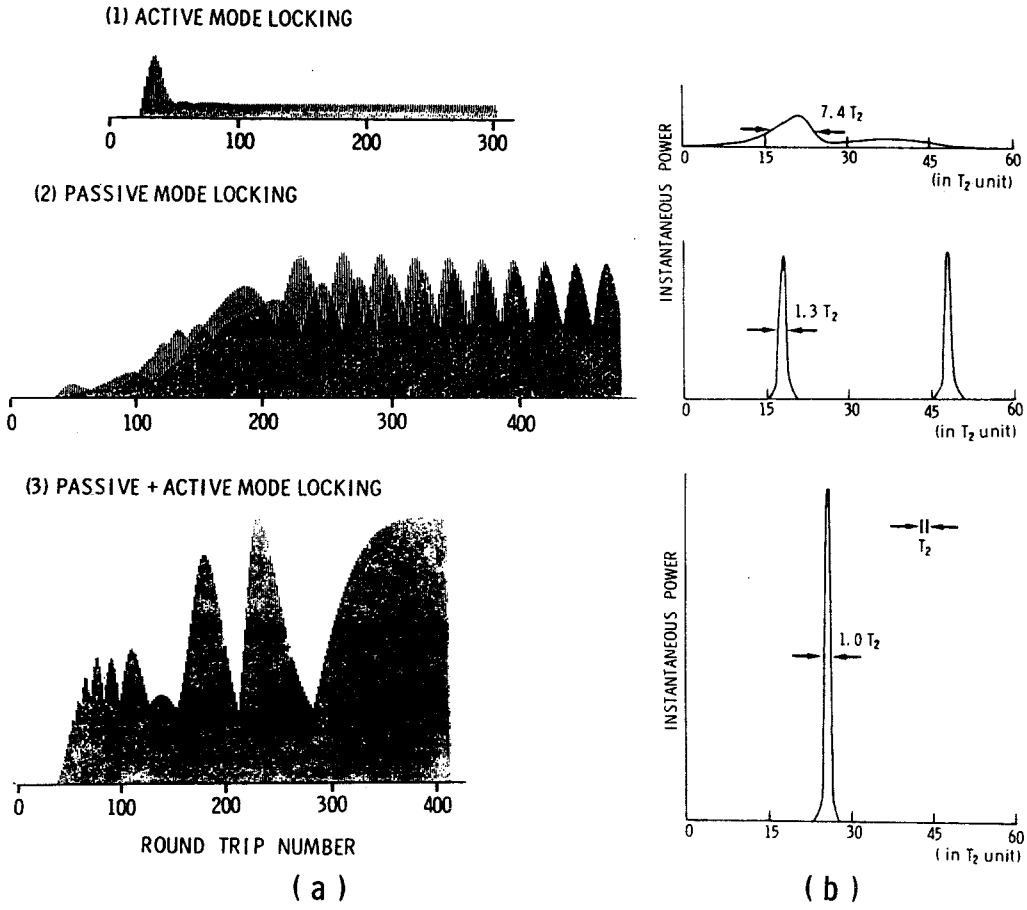

図３－２　計算機シミュレーション　(a)発振開始から定常ＣＷモード同期状態へのパルス成長の有様　(b)定常状態でのモード同期パルス波形　(1)強制モード同期の場合　(2)受動モード同期の場合（２パルスモード同期）(3)受動＋強制モード同期の場合（１パルスモード同期）、用いたパラメータ：Γ＝0.05、K=0.005、λ_L=3000、L_0=60、L_L=0.05、(1)α=0.1 (2)λ_{SA}=-1000、L_{SA}=0.05 (3)α=0.1、λ_{SA}=-1000、L_{SA}=0.05

図３－２中(a)は、発振開始から定常ＣＷモード同期状態へのパルス成長の有様を示示しており、(b)は、ほぼ定常状態での１周回中でのモード同期パルスを示している。また、(1)は、強制モード同期だけの場合、(2)は、受動モード同期だけの場合、(3)は提案した、内部変調を併用した受動モード同期（以後、受動・強制モード同期と略す）の場合である。図中(1)の強制モード同期では、分極の緩和時間を T_2 として、定常状態でのモード同期パルスは、7.4 T_2 程度になり、また瞬時パワーも低いものとなっている。(2)の受動モード同期では、各パルス毎に充分な反転分布を蓄積するために、励起パワーを上げ、しかも長共振器長では、１周回中に２つのパルスが存在している。前述したように、このようにパルスが分裂してしまうと、利得幅利用効率の悪いものとなってしまう。この場合のパルス幅は、1.3 T_2 程度になっている。(3)の受動・強制モード同期では、１周回中に１パルスでしかも瞬時パワーの大きなモード同期パルスが得られている。この場合、パルス幅は、レーザー媒質の分極の緩和時間 T_2 程度となっている。つまり、ほぼ色素のもつ利得幅全部を用いた超短光パルス発生が行われることがわかる。

３－２－３　実　験　結　果

提案した受動・強制モード同期法に対応する実験結果を述べる。

用いた共振器構造を図３－３に示す。図に示すように折れ曲り３枚ミラー構成とした。レーザー媒質としてローダミン６Ｇ（以下Ｒｈ－６Ｇと略す）、可飽和吸収

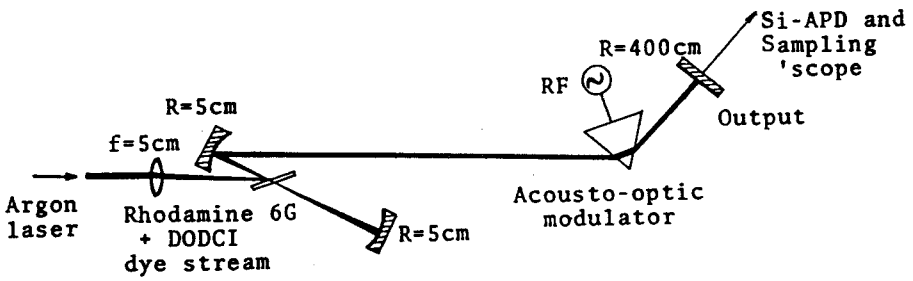

図３－３　受動・強制モード同期法の共振器構成　出力ミラー（９９％の反射率）を除いた全てのミラーは高反射率ミラーである。
共振器長：１０７cm

体としてDODCIを用い、これらを溶媒であるエチレングリコールに溶かし、1本のジェット・ストリームとし、A_r^+レーザーで励起した。また、共振器中にブリュースター角の溶融石英プリズムで構成されている音響光学的変調器（Spectra Physics, Model H-400）を挿入した。この変調器は、図3－6に示す様に溶融石英中の超音波定在波によるブラッグ回折を利用したもので、外部から共振器長に相当する周波数で共振器中に損失変調を与えるものである。また、この変調器はプリズム状になっていることから広帯域同調素子としても使える。上述した全システムで、受動・強制モード同期を構成している。

実験に用いた動作条件は、以下の通りである。A_r^+レーザーの励起パワー2Wを焦点距離5cmのレンズで、厚さ300μm、流速6～7m/sのジェット・ストリーム上に集光した。Rh－6G、DODCIの濃度は、それぞれ1.5×10^{-3}M、1.0×10^{-5}Mである。音響光学変調器は、強制モード同期に必要なモードカップリングを得るために、縦モード間隔の周波数の半分で駆動した。変調の深さは、5％以下である。

次に、典型的なサンプリングオシロスコープ上のトレースを図3－4に示す。これは300psの立ち上り時間を有するSi－APD（アバランシ・ホト・ダイオード、三菱）とサンプリングオシロスコープ（Tektronix 7904、S－4ヘッド）の組み合わせで観測した。図3－4(a)は、受動モード同期だけの場合であり、(b)は提案した受動・強制モード同期の場合である。共振器長は107cmであり、対応する周回時間は7.0ns である。これは、Rh－6Gの利得回復時間とほぼ同程度である。(a)に示すように、受動モード同期だけの場合には、1周回中に2つのパルスが存在する。一方、これに強制変調を併用すると、1周回中に1パルスだけとなっている。この場合、パルス幅は、検出器の制限でほぼ同じだが、パルス波高値は約2倍である。同時に、平均パワーの測定から、これら2つの場合、その差異が見られなかったことから、併用するモード同期法では、受動モード同期法だけの場合に比較して、より短パルスが発生していることがわかる。この単一パルス動作は、数時間にわたって、励起パワーしきい値の50％以上でも可能であった。この場合、波長可変領域は590～610nmであった。

実際のパルス幅測定は、観測系の応答時間に無関係な方法を用いなければならな

いが、通常ＣＷ色素レーザーのように低強度で、高速繰り返し光源の場合には、第４章で述べるが、0.03 ps 程度の時間分解能をもつ第２高調波発生（ＳＨＧ）法が用いられている。図３－５に併用した方法でのＳＨＧ法によるパルスの自己相関波形の一例を示す。この自己相関波形から、元のパルス波形を sech^2 形と仮定して、パルス幅 1.4 ps が得られている。

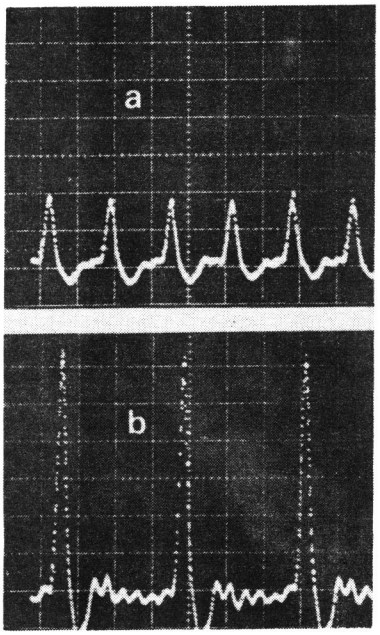

図３－４　受動・強制モード同期の有効性を示す時間波形　(a)受動モード同期の場合（２パルスモード同期）(b)受動・強制モード同期の場合（１パルスモード同期）、時間軸：２ns／div.

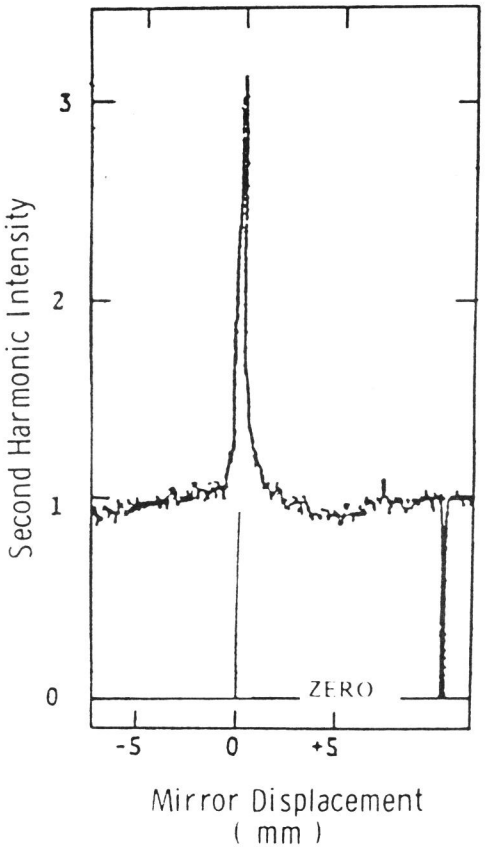

図３－５　ＳＨＧ自己相関波形、パルスを sech^2 型と仮定して、パルス幅 1.4 ps である。

3－2－4　検　　討

提案した受動・強制モード同期法について、シミュレーションの結果と対応する実験結果について述べた。この方法で、サブピコ秒光パルス発生は達成されなかったが、色素の利得幅を有効に利用できることが示された。また、この方法で、共振器構成、レーザーの動作条件を改良すれば、安定なサブピコ秒光パルスが発生可能であろう。

この方法で超短光パルスを発生する場合問題となるのは、図3－3に示したように、共振器内に強制モード同期を行うためにプリズム状変調器が共振器中に挿入されていることである。このプリズムは、広範囲な波長可変（ここでは 590～610 nm）という利点を有するが、一方、超短光パルスを目的とする場合には、パルス広がりをもたらす。このような非平行面をもつプリズムによるパルス広がりは、その材料による線形分散によるものとプリズム中を通過する有限断面ビームの光路差による横分散によるものとがある。この場合には、まず横分散によるパルス広がりが支配的となる。

図3－6に、3－2－3の実験で用いたプリズム状変調器を示した。ここで、この横分散の影響を検討するために、図3－6(b)にこの横分散によるパルス広がりの様子を図式的に示した。プリズム中でのビーム径を1㎜とし、入射角をブリュースター角 θ_B (＝56°)であるとした。ここで、横群速度分散時間 Δt は、次式で与えら

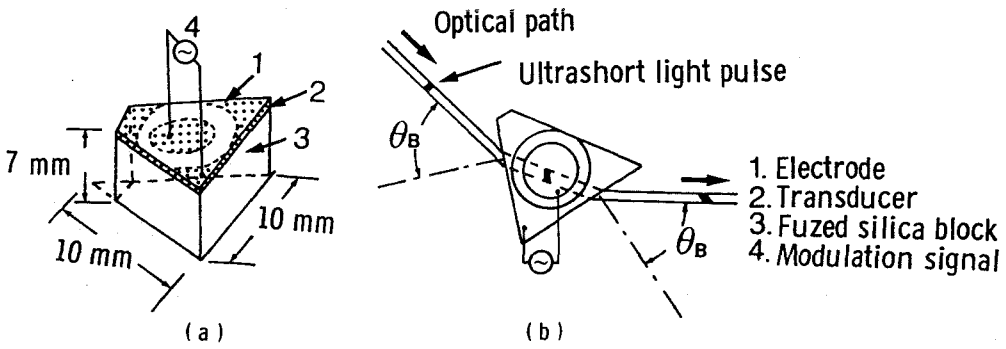

図3－6　用いたプリズム状変調器。(a)寸法　(b)断面図、プリズムによる超短光パルスの横分散の様子が模式的に示されている。
θ_B：ブリュースター角

れる[18]。

$$\Delta t = x(n_g - n_\phi)/C \qquad (3.5)$$

ここで、n_g　n_ϕ は、それぞれ、群、位相屈折率である。xは、プリズム中での光路差である。n_g、n_ϕ は、分散カーブの傾斜と次のような関係がある。

$$n_g - n_\phi = -\lambda dn_\phi/d\lambda \qquad (3.6)$$

ここで、λは波長を表わす。

用いた超音波変調器は溶融石英から成り、この材料に対して$-dn_\phi/d\lambda$は、波長5890Åで、

$$-dn_\phi/d\lambda = 0.35 \times 10^{-5} \ (\text{Å}^{-1}) \qquad (3.7)$$

である[19]。

式（3.5）～（3.7）を用いてΔtを求めると$\Delta t = 0.06$ ps となる。

この検討から、このようなプリズムを共振器中に挿入した場合でも、サブピコ秒パルス発生の可能性は充分にあると考えられる。

3－3　利得変調を併用した受動モード同期[9]

3－3－1　共振器構成

この方法は、シンクロナスモード同期法[21]と受動モード同期法とを併用するものである。つまり、励起源であるA_r^+レーザーに超音波変調器を用いて、一定周期で連続的に繰り返すモード同期パルス列を作り、これでレーザー色素を励起する、いわゆる、シンクロナスモード同期法と、さらに、可飽和吸収体による受動モード同期とを併用するものである。図3－7に、この方法の共振器構成を示す。特にCW色素レーザーの共振器長を励起源であるA_r^+レーザーの共振器長と同じになる様に調整すると、レーザー出力の増大とパルス圧縮の効果が著しく高められる[22]。シンクロナスモード同期の場合には、CW色素レーザーの共振器長を10μm 以下の精度で励起光周期に対応する光路長に一致させないと安定なパルスは得られない。さらに1～2 μm 前後の微調によって初めて1 ps 程度のパルスが得られる[23]。ここ

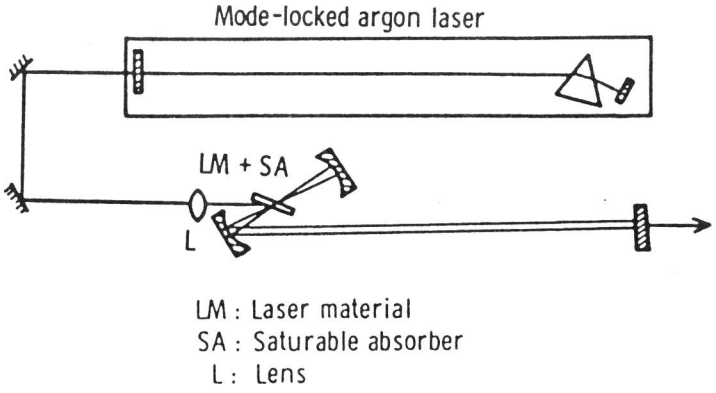

図３－７　利得変調を併用した受動モード同期法の共振器構成

で、提案した方法は、シンクロナスモード同期に受動モード同期を併用することにより、これらのμm オーダーでの共振器調整を緩和し、しかも安定でピークパワーの高い超短光パルスを得るものである。

３－３－２　実　験　結　果

図３－８に示すように、A_r^+レーザー（λ＝５１４.５ｎｍ）に超音波変調器で強制

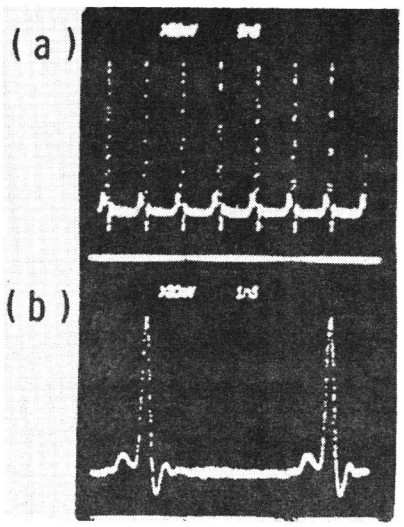

図３－８　A_r^+イオンレーザーからのモード同期パルス列波形

(a)　時間軸：５ns／div.

(b)　時間軸：１ns／div.

モード同期をかけると、パルス幅１００～２００ps 程度のモード同期パルス列が得られる。用いたA_r^+レーザーの共振器長は L＝１０７.４cm であり、変調器にかける周波数は、その半分の ６９.８MHzである。この時のA_r^+ レーザーの 平均パワーは４００mW である。図３－８に示すパルス幅１５０ｐｓ*の光パルス列で、色素レーザーの共振器長をA_r^+レーザーの共振器長とほぼ同程度にして励起した時のいわゆるシンクロナスモード同期法によって得られたモード同期波形を図３－９に示す。

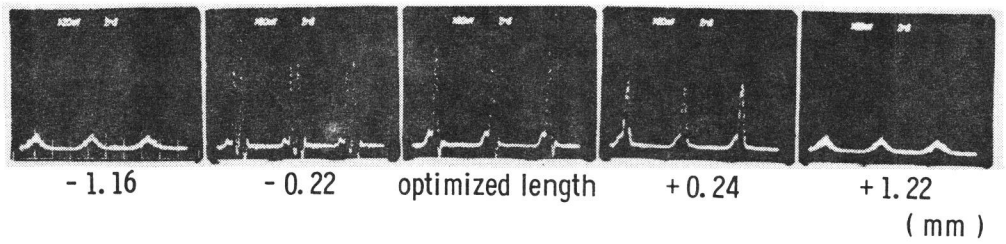

図３－９　CW色素レーザーの共振器長の変化に対するモード同期波形

横軸は、ＳＨＧ相関法によるパルス幅測定で用いた非線形光学結晶（ＫＤＰ)からの第２高調波出力が最高となる所を最適長とし、それより色素レーザーの共振器長が短かい時を“－”とし、逆に長い場合を“＋”として表わしてある。これより、最適長から±２００μm 程度の範囲でモード同期が、かかっていることがわかる。また、図３－１０は、共振器長の変化に対する基本波出力の平均パワーを示している。

次に、提案した方法による光パルスのＳＨＧ自己相関波形の一例を図３－１１に示す。この実験では、A_r^+ レーザーモード同期用発振器の安定性が充分ではなかったが、この方法の有効性は確認された。図３－１１(a)は、可飽和吸収体であるＤＯＤＣＩ を加えない場合、つまり、シンクロナスモード同期の場合である。この場合、元のパルスを sech^2 形と仮定して ３０.１ｐｓ であった。この状態のままでDODCIを加え、受動モード同期を併用するとパルス幅は、(b)から(d)へとしだいに、パルス

---

*この場合のパルス幅測定は、Spectra Physics 社高速検出器（Model ４０３B、立ち上がり～５０ps）と Tektronix オシロスコープ（７９０４，Ｓ－４ヘッド（立ち上がり～２５ps））を用いて行った。

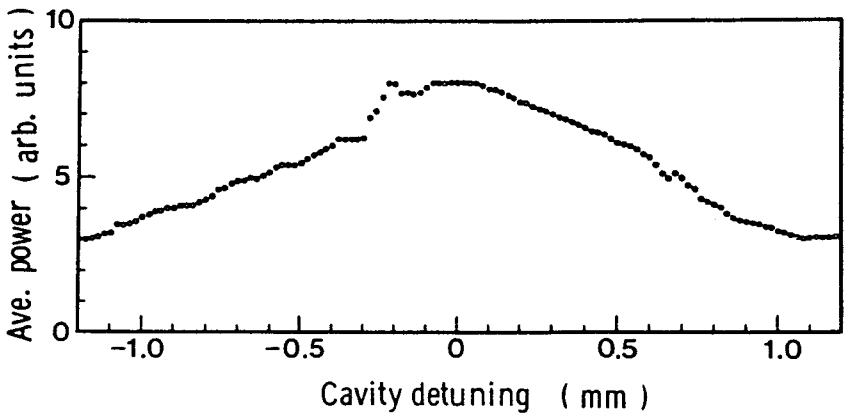

図３－１０　ＣＷ色素レーザーの共振器長の変化に対する平均出力パワー

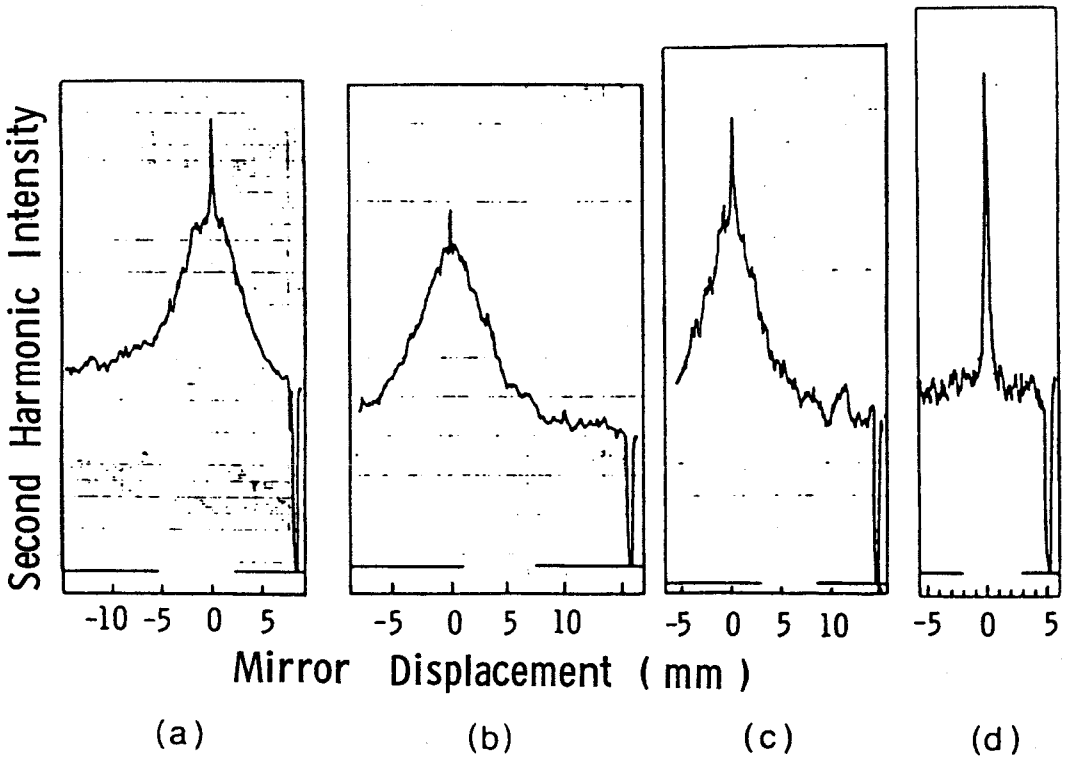

図３－１１　ＳＨＧ 自己相関波形 (a)シンクロナスモード同期の場合（Ｒｈ－６Ｇだけ） (b)～(d)利得変調を併用した受動モード同期の場合
(b)ＤＯＤＣＩ 0.1×10^{-5}Ｍ (c) 0.2×10^{-5}Ｍ (d) 0.3×10^{-5}Ｍ

の圧縮が見られる。(b)、(c)、(d)は、それぞれDODCIの濃度が 0.1×10^{-5}M、0.2×10^{-5}M、0.3×10^{-5}Mの時の自己相関波形である。パルス幅は、これらの濃度に対応して、22.9ps、14.3ps、1.4psと短かくなっている。また、シンクロナスモード同期だけの場合より、共振器長の調整が厳しくなく超短光パルスが得られることが確認された。

3－3－3　検　　討

利得変調を併用した受動モード同期法の実験結果について述べた。そして、この方法は、通常のシンクロナスモード同期法に比較して、超短光パルス発生の条件が緩和されることが確認された。この段階では、提案した方法の有効性は示されたが、サブピコ秒光パルスは得られなかった。その後、この方法は、受動モード同期法に比較して広帯域波長可変で、しかもピークパワーの高い超短光パルス発生法として注目され、[23] 最近、石田等[24]、[25]はこの方法をRh－6GとDODCI色素に適用し、発振波長574～611nmで、最小パルス幅0.3psの光パルスを得ている。この場合のピークパワーは500Wである。この様に、著者等は、提案した方法でサブピコ秒光パルスは得られなかったが、この方法でサブピコ秒光パルス発生が可能であることが示された。

3－4　混合色素による受動モード同期[9]、[26]、[27]

3－4－1　共振器構成

受動モード同期法は、可飽和吸収体による吸収の飽和効果とレーザー媒質の利得の飽和効果の共存により非常に短い光パルスが得られる。色素レーザーは固体レーザーとは異なり低入力でも利得の飽和効果がすみやかに生じるので、吸収の回復時間の長い可飽和色素（DODCIで250ps程度）を用いてもモード同期が行える。本実験で用いた受動モード同期法の共振器構成の一例を図3－12に示す。また、これ以外に4ミラー構成、5ミラー構成等を用いて受動モード同期が行われているが、共通していえることは、Rh－6GとDODCIの色素の組み合わせによるものである。特に、サブピコ秒光パルスを目的とする場合には、2－3－5で述べた様に色素レーザーの波長可変性を犠牲にして、共振器内から、出来るだけ分散素子を

LM : Laser material
SA : Saturable absorber
L : Lens

図３－１２　受動モード同期法の共振器構成

取り除いた構成で行われている。現在、最短パルスの発生は、この受動モード同期法で実現されている[2]。ここでは、サブピコ秒光パルス発生と同時に、色素レーザーの１つの特徴である波長可変の拡大化を目的として、混合色素による受動モード同期法を提案し、対応する実験を行った。以下、用いた混合色素の特性、ならびに、混合色素によるモード同期特性について述べ、最後に、従来の受動モード同期法との比較検討をする。

３－４－２　混合色素の特性

本実験に用いた混合色素はレーザー媒質としてRh−6G、Rh−B 、可飽和吸収体としてDODCI、DQOCI である。これらの吸収特性の測定には、日立自記分光光度計（EPS−3T形）を、蛍光特性の測定には、日立分光蛍光光度計（MPF−2A形）を用いた。図３－１３ は、これらの吸収、蛍光特性で問題となる、Rh−６G、Rh−Bの蛍光特性とDODCI、DQOCI

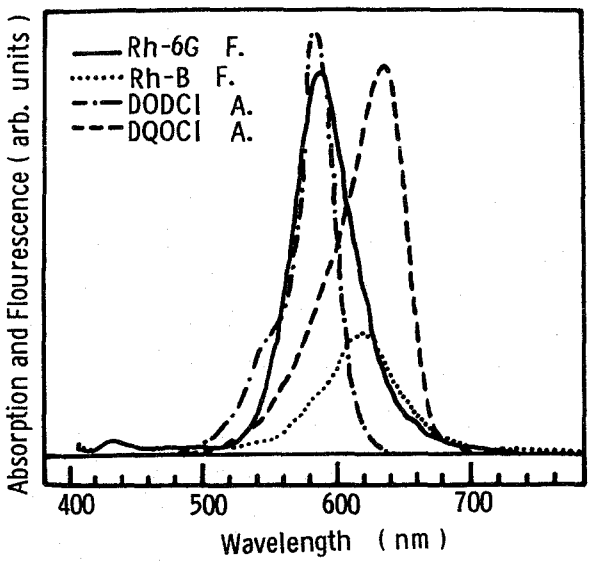

図３－１３　混合色素の蛍光、吸収特性

の吸収特性をプロットし直したものである。これより、Rh－6GとDODCIの蛍光、吸収カーブのピークがほぼ一致しており、また、Rh－BとDQOCIとの蛍光、吸収カーブのピークもほぼ一致していることがわかる。つまり、この混合色素を用いる受動モード同期法は、このような2種類のレーザー媒質と可飽和吸収体を混合することにより、単一の組み合わせでは、達成できない波長域での超短光パルス発生を目的としたものである。

次に、図3－14、図3－15に、それぞれ、Rh－6GにDODCIを加えた時の蛍光スペクトル、Rh－6GとRh－BにDODCIを加えた時の蛍光スペクトルを示す。これらの蛍光スペクトルは、前述した日立分光蛍光光度計で測定した。実験に用いた濃度は、実際のレーザー実験とほぼ同程度のものとした。また、励起波長はAr^{+}レーザーを想定し、波長514.5 nmとした。図3－14には、Rh－6GとこれにDODCIを加えていった時の蛍光スペクトルの変化の様子が示されている。同様に、図3－15には、Rh－6GとRh－Bの混合色素にDODCIを加えていった時の蛍光スペクトルの変化の様子が示されている。これらのカーブから、DODCIの濃度によって、その蛍光スペクトルに顕著な変化が見られる。また、濃度によっては、その蛍光スペクトルカーブをほぼ平坦にすることができ、広い蛍光幅を利用できることがわかる。つまり、この方法は、別の解釈をすれば、積極的に、外部から混合色素を用いてその蛍光スペクトルを改善しようとするものである。

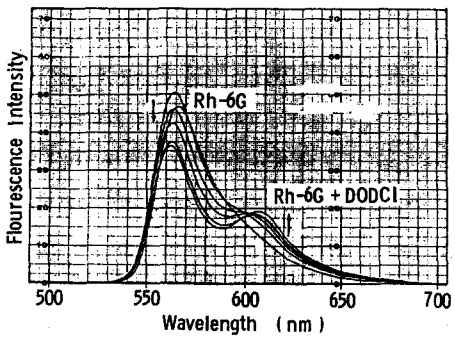

図3－14 Rh－6GにDODCIを加えた時の蛍光スペクトル

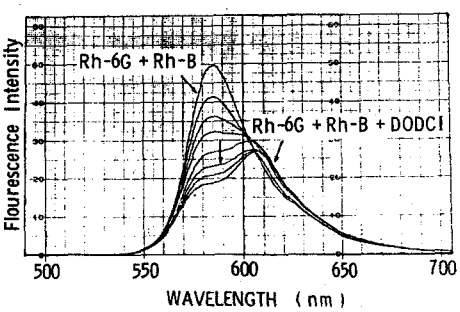

図3－15 Rh－6G、Rh－BにDODCIを加えた時の蛍光スペクトル

次に、これらの混合色素Rh－6G、Rh－Bのノーマル発振での濃度の変化に対する発振スペクトルの変化を図３－１６、図３－１７、図３－１８に示す。これらの発振スペクトルの観測には、分光器（島津、ＧＥ－１００）の乾板取付け枠の位置に、自己走査型１０２４ビットイメージセンサ（松下、MEL－１０２４KV)を取り付けて

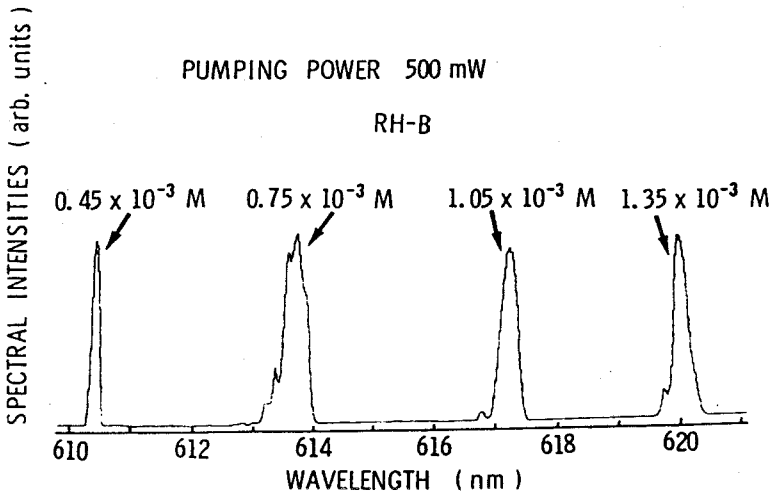

図３－１６　Rh－B 色素だけの場合のＣＷ発振スペクトル

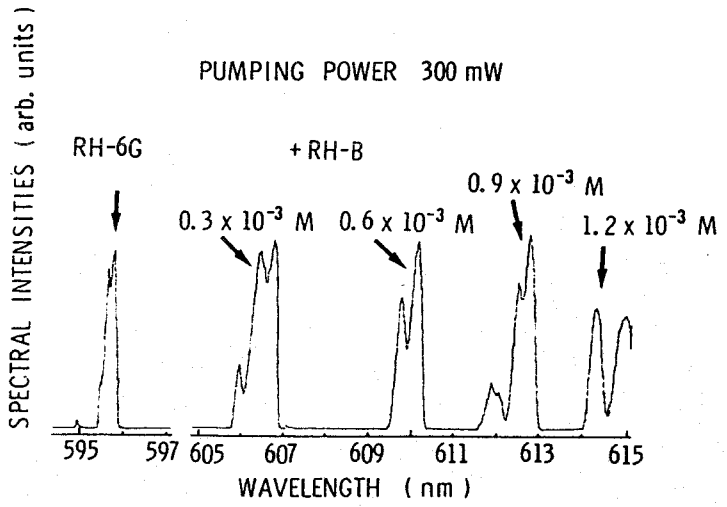

図３－１７　Rh－６G色素と Rh－６G、Rh－B 混合色素の場合のＣＷ発振スペクトル

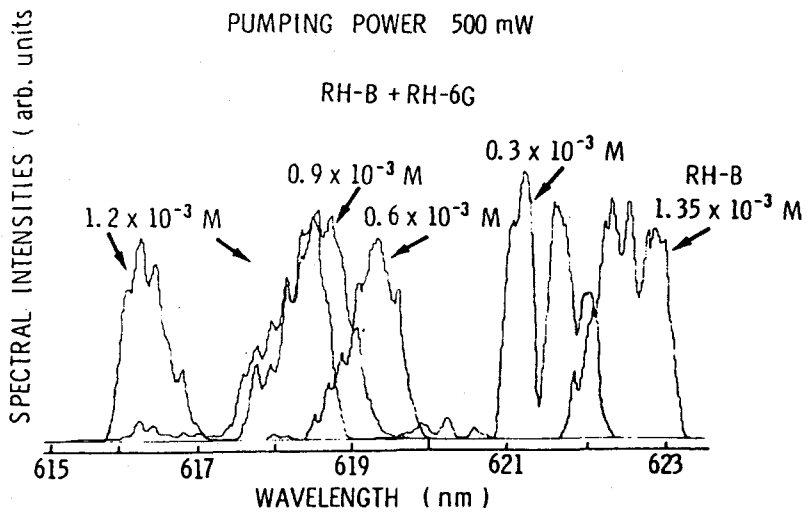

図3－18　Rh－B色素と Rh－B、Rh－6G 混合色素の場合のCW発振スペクトル

行った。さらに、イメージセンサーからの出力は、マイクロコンピュータで平均化され、蓄積された。図3－16 は Rh－Bだけの場合の濃度の変化に対する発振スペクトルの変化を示している。Ar^+ レーザーの励起パワーは、500mWである。図3－17 は、Rh－6Gの濃度を 1.5×10^{-3}M に固定し、これに Rh－B を加えた時の発振スペクトルを示している。また、図3－18 は、Rh－8 の濃度を 1.35×10^{-5}M に固定し、これに Rh－6G を加えた時の発振スペクトルを示している。図3－17、3－18から混合色素の場合、Rh－6Gだけでは 596 nm、Rh－Bだけでは 623nm 付近で発振しているが、これに、Rh－B あるいは Rh－ 6Gを加えてゆくと、それぞれ 615nm、616 nm と長波長、あるいは短波長側へシフトしてゆく様子が示されている。どちらの場合にも、それぞれ Rh－6G と Rh－Bとがお互いに影響しあいながらノーマル発振をしており、単独の色素の場合より若干のスペクトルの広がりが見られる。

次に、図3－19に濃度一定のもとでの励起パワーに対する発振スペクトルの移動を示す。(a)は、Rh－6G、Rh－B の濃度が、それぞれ 1.5×10^{-3}M の混合色素の場合、(b)は Rh－6G の濃度が 2.0×10^{-3}M の場合に対応している。励起波長は、Ar^+ レーザーの 514.5 nm、励起パワーは、300mW～1W程度まで変化させた。

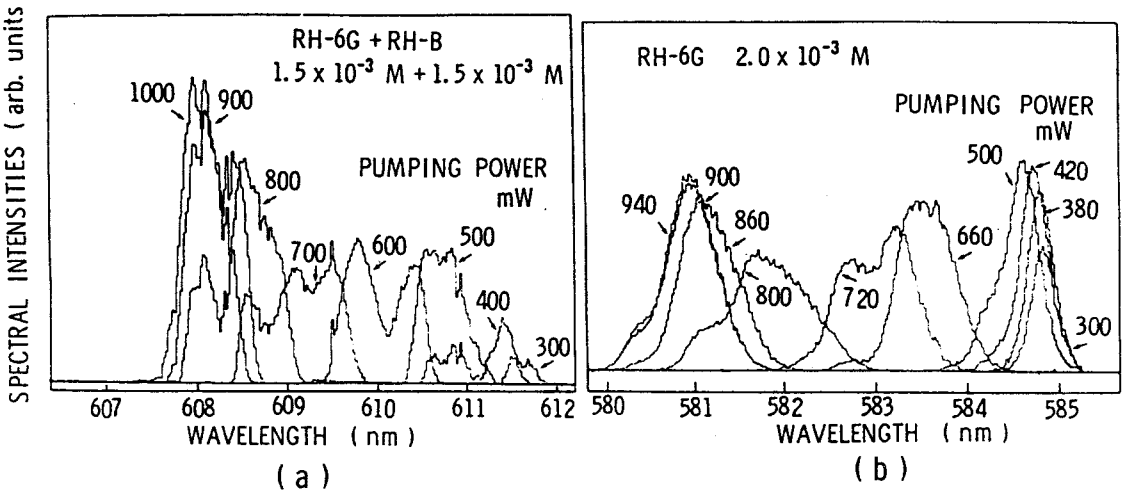

図３－１９　励起パワーに対する発振スペクトル特性
(a)　Rh－６G、Rh－B混合色素の場合
(b)　Rh－６G 色素の場合

どちらの場合にも、励起パワーの変化によって４０Å 程度の波長のシフトが観測された。若干、混合色素の場合スペクトルの広がりが見られる。

３－４－３　実　験　結　果

ここでは、上述した混合色素を用いて行ったモード同期特性の実験結果について述べる。用いた共振器構成は、図３－１２に示した折れ曲がり３ミラー構成である。共振器長は７５.０cm、Ar^+ レーザーの励起波長５１４.５nmで、励起パワー８１０mWである。Rh－6G、Rh－Bの濃度は、それぞれ 1.5×10^{-3} M、DODCI、DQOCIの濃度は、それぞれ 1.0×10^{-5} Mである。発振波長の同調は、折れ曲がり部分のミラーの傾きによる波長選択性を利用した。図３－２０、図３－２１に発振波長を変化させた時のSHG法によるパルス幅測定結果を示す。図３－20 (a)は、発振波長６１５nm に同調した時の SHG 相関波形を示し、パルス幅は sech^2形と仮定して0.43ps である。(b)は、(a)に対応する発振スペクトルを示している。スペクトルの短波長例はガウス型にフィットし、長波長側は sech^2 形にフィットする、非対称なスペクトル波形が得られた。この時のスペクトル幅（FWHM）は $\Delta\lambda=16.7$ Å

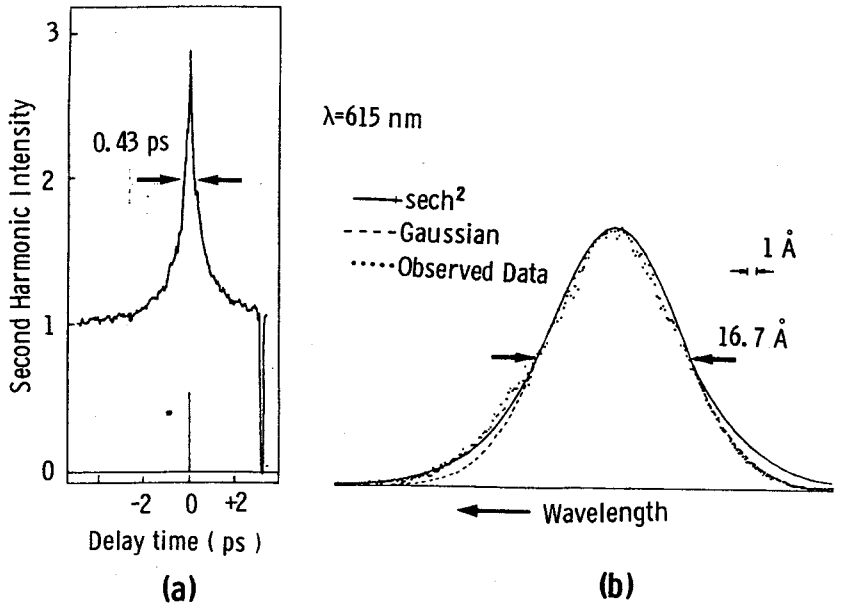

図３－２０　(a)ＳＨＧ自己相関波形、λ＝６１５nm
(b)(a)に対応する発振スペクトル

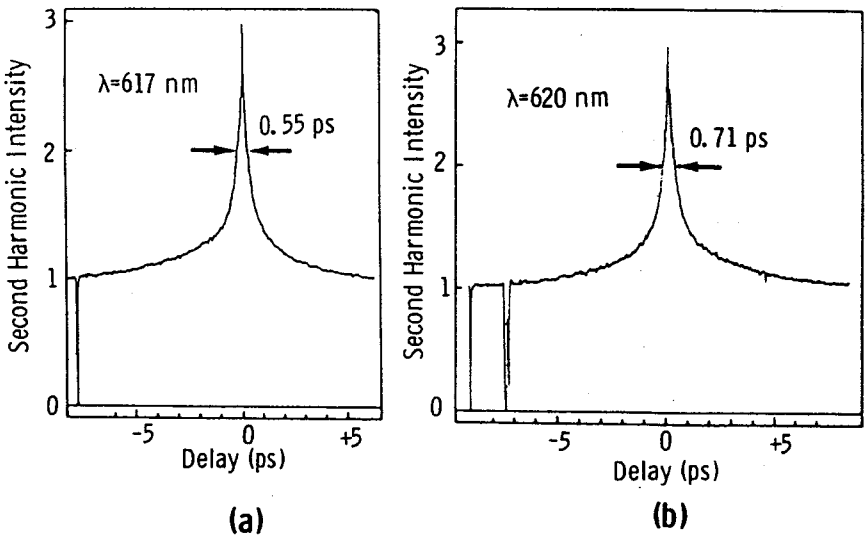

図３－２１　ＳＨＧ自己相関波形　(a) λ＝６１７nm
に同調した場合　(b) λ＝６２０nm に同
調した場合

であり、これらの値から時間幅 Δt_p、スペクトル幅 $\Delta\nu$ の積を計算すると、$\Delta t_p \Delta\nu = 0.57$ となり、$sech^2$ 形の場合のフーリエ変換極限値 0.32 の約1.5倍になっている。図3－21(a)、(b)は、それぞれ発振波長617nm、620nmに同調した時のSHG自己相関波形を示し、パルス幅は $sech^2$ 形と仮定して、それぞれ 0.55 ps、0.71ps となっている。

3－4－4　検　　討

レーザー媒質としてRh−6G、Rh−B、可飽和吸収体として DODCI、DQOCIを用いた混合色素の組み合わせによる受動モード同期による実験結果について述べてきた。これらの色素の組み合わせが最良とはいえないが、通常の Rh−6G、DODCI の組み合わせに比較して、波長590～620nmの広範囲でサブピコ秒光パルスを得ることができた。ところで、図3－20、図3－21のSHG自己相関波形において発振波長を長波長側に同調するにしたがってパルス幅が広くなっているが、この原因は、レーザー媒質の放出断面積と可飽和吸収体の吸収断面積の比が長波長側で小さくなるためと考えられる。

3－5　サブピコ秒光パルス発生上考慮すべき問題点[9]、[26]

ここでは、実験により得られたサブピコ秒光パルス発生のための動作条件について検討すると共に、その発生を抑制する問題点について述べる。

(1)　用いる材料の利得帯域幅が広いこと。

これは、パルス幅とスペクトル幅との間には、フーリエ変換の関係が成り立つから、利得帯域幅の広い材料ほど短パルス発生に有利であることを意味している。特に、色素レーザーは、他のレーザーに比較してこの利得帯域幅が広いため（＞500Å）にサブピコ秒あるいは数十フェムト秒台の光パルスが得られている。

(2)　共振器中から分散性媒質を排除する。

これは、超短光パルスを得るためには、色素レーザーの特徴の1つである波長可変性をある程度犠牲にして共振器内部から、帯域制限素子を排除することを意味している。3－2－4でも検討したが、共振器内に非平行面をもつ光学素子を挿入した場合には、もちろん材料のもつ線形分散でもパルスは広がるが、さらにこのような場合に

は横分散がきいてきて短パルス化を阻害する。またCW色素レーザーの場合、これらの分散性素子を排除した場合、共振器中には厚さ200 μm 程度の ジェット・ストリームだけとなるが、パルスが定常状態に達するまでには、この媒質中を何往復もするわけで、この分散効果を抑制して超短光パルスを発生するためには、このジェット・ストリームの厚さのより薄いものを用いる必要がある。一般に、線形分散による媒質中でのパルス幅広がりは次式で与えられる[28]。

$$\Delta t_p(z) = \Delta t_p(0)[1 + \{2zp/(\Delta t_p(0))^2\}^2]^{1/2} \quad (3.8)$$

ここで、zは伝搬距離、pはパルス幅・スペクトル幅積（$\Delta t_p \cdot \Delta \nu$）、$\Delta t_p(0)$、$\Delta t_p(z)$は、それぞれ元のパルス幅、および距離zだけ伝搬した時のパルス幅を示す。式（3.8）から、短パルス発生には、分散性媒質を極力減らすと共に、パルス幅・スペクトル幅積 $p=\Delta t_p \cdot \Delta \nu$ がなるべく小さくなるようなパルスを発生することが重要となる。つまり、パルス内部に周波数変動を含まない、いわゆる、フーリエ変換極限パルス（TLP）が望ましい。しかし、このTLPの発生は、特に色素レーザーのように利得帯域幅の広いレーザーでは、パルス内部に周波数変動が起こりやすく容易ではない。このため、リオ・フィルター等を用いてある程度帯域制限をしてTLP発生が行われている。この場合、なるべくフリー・スペクトル・レンジ（FSR）の大きいもの、つまり、リオ・フィルターの場合には、サブピコ秒の時間幅に対して充分な帯域を有する程度の厚さのものを使用する必要がある。この様な点を考慮して、パルス内部に周波数変動の小さいサブピコ秒光パルスを実現した例が報告されている[29],[30]。しかしながら、極限パルス（<0.1 ps）発生を目的とする場合には、このような薄い結晶板の線形分散も無視できないので、図3－22に示すように、共振器ミラーを希望する波長域で矩形的な透過特性をもつようにして一種のフィルターとして用いれば[31]共振器中に分散性素子を挿入することなく、スペクトル幅を制限しTLPに近い極限パルス発生が可能となろう。現在、著者は、図3－22に示す、種々の透過特性をもつミラーを用いての超短光パルスの発生も検討中である。

(3) レーザー媒質の放出断面積（σ_a）と可飽和吸収体の吸収断面積（σ_b）の比を高める。

New[32]は、これらの比をsとし次式で定義している。

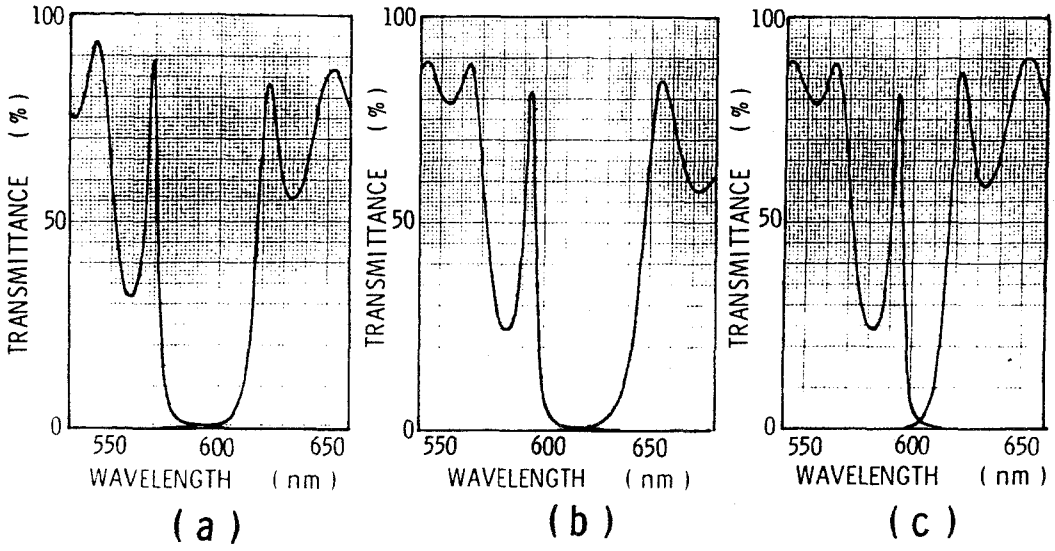

図３－２２　矩形的な透過特性をもつ出力ミラー　(a)中心波長：５９５nm、透過率５％でのバンド幅 $\Delta\lambda_{5\%}$=３０nm　(b)中心波長：６１０nm　$\Delta\lambda_{5\%}$=３０nm　(c)中心波長：６０５nm、$\Delta\lambda_{5\%}$=７nm

$$s = kA_a\sigma_b/A_b\sigma_a \qquad (3.9)$$

ここで、A_a、A_b は、それぞれレーザー媒質、可飽和吸収体のビーム断面積、ｋは可飽和吸収体の位置によって決まる定数である。

Ｎｅｗ は、式（３.９）で定義したｓが大きい程、パルス圧縮の領域が広がり、長共振器長でも安定なモード同期動作が行えると報告している[32]。この比を高めるために、Bradley等[23] [29] は、図２－１４ (c)に示した様に可飽和吸収体をレーザー媒質のジェット・ストリームと分離して、他のミラーに密着セルとして高速に流し、さらに、可飽和吸収体の方をレーザー媒質のビーム断面積よりも２倍程度きつく絞り込むことにより式（３.９）中のAa/Ab の比を上げ、ｓを高めている。しかし、この方法も、ｓだけに着目した場合にはいい方法であるが、通常の方法に比較して光学部品が増え、これらの分散の影響が大きくなる欠点がある。このように、可飽和吸収体の位置が問題となるのは、共振器をファブリペロー形で構成しているためであり、これをリング

共振器構成にすると問題はなくなる。現在、0.1ps を切る 90fs の光パルス[2]は、この様なリング共振器構成を用いて得られている。

3－6 結　　言

提案した超短光パルス発生法についての検討を行ってきた。これにより得られた結果は次のようにまとめられる。

(1) 内部変調を併用した受動モード同期法では、従来の受動モード同期法に比較して、安定な超短光パルス発生が達成できた。

(2) 利得変調を併用した受動モード同期法では、従来のシンクロナスモード同期法に比較して、超短パルス発生の条件が緩和されると共に、また受動モード同期法に比較して、同調範囲が広いこと、さらに、ピークパワーの大きいパルスが得られることが確認された。

(3) 混合色素による受動モード同期法では、従来の色素の組み合わせ（Rh－6GとDODCI）に比較して、同調範囲を広げ、しかも、その領域でのサブピコ秒光パルス発生が達成できた。

(4) 以上述べてきた実験を行い、超短光パルス発生のパラメーターをある程度把握することができ、著者は、図3－23に示す様に、純粋な受動モード同期によってパルス幅0.2ps の光パルスを得ることができた。

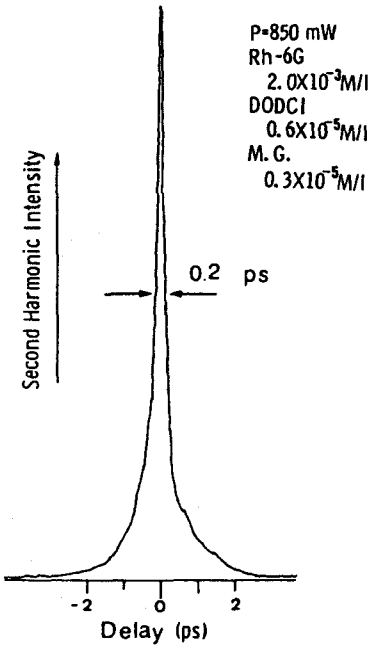

図3－23

受動モード同期法によって得られた最短パルスの自己相関波形

第４章　サブピコ秒光パルスの測定[3],[11],[23]

４－１　緒　　言

前章でサブピコ秒光パルス発生について述べてきたが、発生と並行してこのような超短光パルスを測定するための種々の技術的改良も試みられてきている。高速エレクトロニクスの発展によって、現在サンプリングオシロスコープと高速光半導体素子を組み合わせて時間分解能５０ps 前後の測定ができる。しかし、これでピコ秒、サブピコ秒光パルスを測定するにはなお程遠い。レーザー技術と共に最近発展してきたストリークカメラは、時間分解能数ピコ秒をもつ装置が市販されている。これは実時間上での直接測定を行うので、得られた結果に解釈上の曖昧さがないという利点を有する。サブピコ秒領域では現在 0.7 ps の分解能をもつストリークカメラが報告されている[1]。しかしながらこの領域では、１回の測定の調整に相当の時間を要するので簡単には扱えない。

これらに代る高分解能測定法に、第１章でも述べた非線形相関法がある。第２高調波発生法（ＳＨＧ）や２光子蛍光法（ＴＰＦ）を利用した２次自己相関法[2],[3] が従来からよく用いられ、また３次以上の高次相関法もパルスの非対称性等の情報を得るため利用されている。

相関法の欠点は、直接的な実時間測定でないため得られた相関波形から一義的にパルス幅、波形が決まらず、測定結果の解釈に曖昧さが入ってくることである。しかしながら、このＳＨＧ法は、用いる非線形光学結晶での非線形効果の応答時間や光パルスの伝搬効果に注意すれば、現在の技術で３０ｆｓ 程度の時間分解能をもつと報告されている[4]。

ＣＷ色素レーザーのように低強度（ピークパワー１００Ｗ）で高速繰返し（１００ＭHz ）光源のパルス幅測定には、このＳＨＧ法が広く用いられてきている。従来、このＳＨＧ法を用いて測定されていたのは、パルスの強度の自己相関であり、内部に含まれる位相項までを含む自己相関については、ほとんど考慮されていなかった。最近、Diels 等は、気圧掃引による干渉計を用いて充分に低速なτの変化を得て相関器を構成し、パルス内部の位相特性の観測を行っている[5],[6]。彼等の用いたような充分に低速な掃引によれば、位相項をも含む自己相関は得られるが、逆に強度について

の自己相関は得られなくなってしまう。

本章では、強度の相関と位相までも含めた相関とを、同時に分離して測定できる相関器について述べている。まず、4－2では、この方法の基本原理を説明すると共に、4－3で光パルスの内部に光周波数の変動（いわゆるチャープ）が含まれる場合、これらの強度あるいは位相相関がどのようになるかを計算機シミュレーションで検討した。さらに、4－4で上述した強度および位相の相関波形を測定するために試作した、相関器の構成について述べると共に、4－5でこの相関器を用いた実験結果を示す。最後に、4－6では、従来の方法との比較検討を行う。

4－2　位相成分を含む自己相関[11],[23]

ここでは、強度の相関と位相までも含めた相関とを、同時に分離して測定する方法の基本原理を説明する。

試作した相関器の構成を図4－1に示す。図に示すように、CW色素レーザーからの超短パルス列は、ビームスプリッターBSで等分され、それらパルス間の相互の遅延をとるために、可変遅延装置（ここでは、SP、PZT等の部分）を含む干渉計を経由して、非線形光学結晶であるKDP上に平行配置で集光される。KDPで発生した第2高調波は、フィルターFで基本波成分をカットされた後、検出器（ここでは、光電子増倍管PMT）に入れられる。PMTからの出力信号は次式で与えられる[5]。

$$
\begin{aligned}
S(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} |\{E(t) + E(t-\tau)\}^2|^2 dt \\
&\propto \int_{-\infty}^{\infty} [\varepsilon^4(t) + \varepsilon^4(t-\tau) + 4\varepsilon^2(t)\varepsilon^2(t-\tau) \\
&\quad + 4\{\varepsilon^2(t) + \varepsilon^2(t-\tau)\}\varepsilon(t)\varepsilon(t-\tau) \times \\
&\quad \cos\{\omega\tau - \phi(t) + \phi(t-\tau)\} \\
&\quad + 2\varepsilon^2(t)\varepsilon^2(t-\tau)\cos 2\{\omega\tau - \phi(t) \\
&\quad + \phi(t-\tau)\}]dt \qquad (4.1)
\end{aligned}
$$

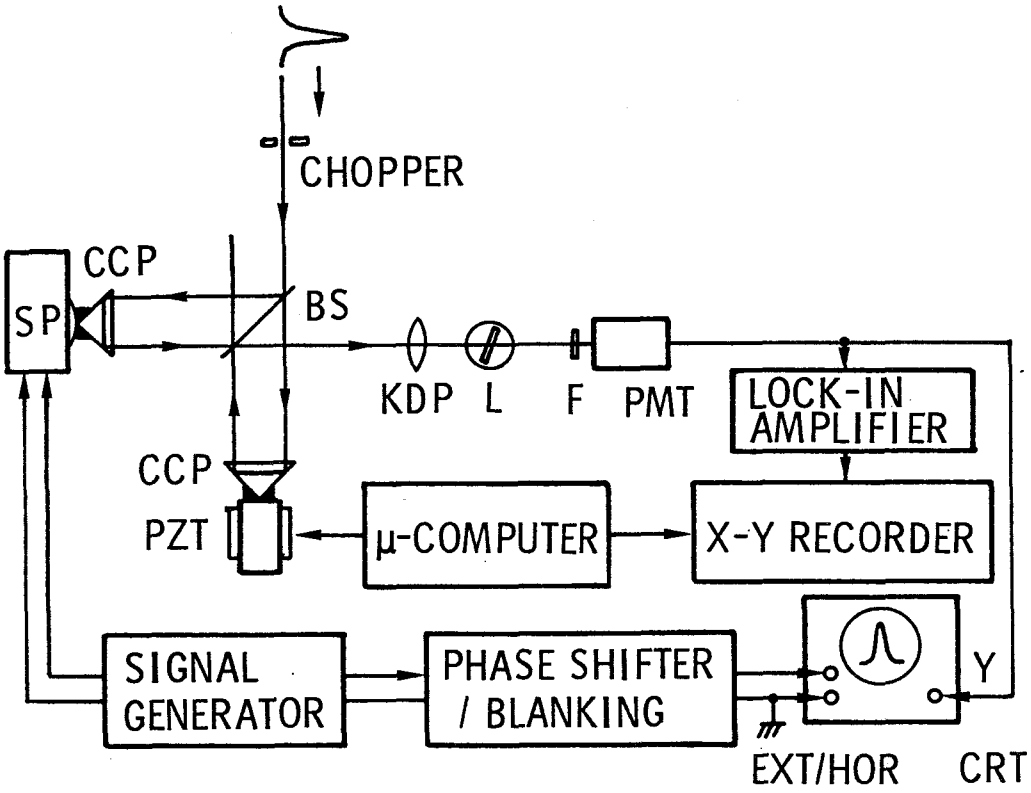

図４－１　実　験　構　成　図
CCP：コーナー・キューブ・プリズム、ＳＰ：スピーカー、
ＰＺＴ：圧電素子機構微動装置、PMT：光電子増倍管、
ＢＳ：ビームスプリッター、Ｆ：フィルター、Ｌ：レンズ、
EXT／HOR：外部水平掃引

ここで、$\varepsilon(t)$はパルスの電界を

$$E(t) = \varepsilon(t)\exp[i\{\omega t + \phi(t)\}] \qquad (4.2)$$

とした時のエンベロープ、ωは光の周波数、τはパルス相互間の遅延、$\phi(t)$はパルス内部の位相変化である。式（4.1）で、第１、第２項は、バックグラウンド項に相当し、第３項は、強度の自己相関関数$G^{(2)}(\tau)$を与える。第４、第５項は、通常用いられる程度の高速掃引では、分解されず平均化されて観測されない項であるが、安定で充

分低速な掃引を行えば、観測可能な項である。したがって、従来の光パルスについての強度相関では、最初の3項だけが測定されていた。安定で充分な低速掃引では、さらに第4、第5項が含まれて観測される。すなわち、式（4.1）のS(τ)そのものが観測されることになる。第4、5項は、 $\int \cos\{\omega\tau - \phi(t) - \phi(t-\tau)\}dt$ の項を含むので、τの掃引に対して cos ωτの変動を含み、かつ位相についての相関を与える項であることがわかる。ここで試作した相関器においては、パルス波形ε(t)全体にわたるτの掃引区間中で、高速と低速掃引とを交互に繰り返しているので、強度の相関と位相項まで含んだ相関、すなわちS(τ)とを、交互に得ることができ、その結果、掃引区間全体にわたって、強度相関と位相項までも含んだ相関が見かけ上、同時に、かつ分離して得られることになる。なお、式（4.1）から、完全なモード同期パルス（式（4.2）でε(t)がtのある区間で安定な0を含む）に対して得られる相関波形でのコントラスト比（バックグラウンド値（τ＝∞で得られる）に対するピーク値（τ＝0で得られる）の比）は、第1、2、3項だけによる強度相関で1：3、第4、5項をも含む位相相関で1：8になることがわかる。

4－3　計算機シミュレーション [11]、[23]

ここでは、光パルスの内部に光周波数の変動が含まれる場合、これらの強度あるいは位相相関がどのようになるかを計算機シミュレーションによって検討する。

まず、問題点は、周波数変動をどのような形で式（4.1）に取り入れるかである。ここでは、最も簡単な場合として、式（4.2）での位相の変化φ(t)を

$$\phi(t) = 4A(t/\Delta t_p)^2 \qquad (4.3)$$

とした。これは瞬時周波数 dφ(t)／dt

$$d\phi(t)/dt = 8A(t/\Delta t_p) \qquad (4.4)$$

が時間に関して1次の周波数変化（チャープ）を含むことを意味している。ここで、Δt_p はパルス幅（強度半値全幅）であり、Aはチャープ率を示す。Aの値はパルス中心（t＝0）における位相量に対する強度半値点（$t = \Delta t_p/2$）での位相量の差（ラジアン）である。

ＣＷ色素レーザーからの超短光パルス内のチャープに関しては、Ippen 等の実験報告[7]がある。彼等は、ＣＷ色素レーザーからのパルス光のダイナミック分光により、パルス内部に正のチャープがあることを確認し、これと逆の分散特性をもつ回折格子対を用いて、パルスの圧縮を試み、0.3 ps の光パルスを得ている。その結果、チャープはほぼ線形であると結論している。このような実験結果を考慮して、式（4.3）の形で位相変化$\phi(t)$を仮定し、本実験結果との対応を試みた。また、パルス波形は、受動モード同期ＣＷ色素レーザーでの理論解析[8]および、実験[9]よりsech^2形を採用した。すなわち、式（4.2）のパルス電界を

$$E(t) = \mathrm{sech}(1.76t/\Delta t_p)\exp[i\{\omega t + \phi(t)\}] \qquad (4.5)$$

とした。図４－２に、チャープ率Ａの影響を見るための計算機シミュレーションの結果を示す[10]、[11]。図４－２中(a)は、各々パルス電界のエンベロープ｜E(t)｜(＝$\varepsilon(t)$)、その実数部Re (E(t))、および虚数部Im (E(t)) を示し、横軸はパルス幅の半値全幅Δt_pで規格化して示してある。(b)は、パルスの強度（白破線）と位相（縦線群）との自己相関波形を示し、横軸は強度相関波形の半値全幅$\Delta \tau_I$で規格化して示した。(c)は、対応するパワースペクトルであり、横軸はＡ＝０におけるスペクトルの半値全幅$\Delta \nu$で規格化して示した。チャープ率ＡがＡ＝０の場合、つまりチャープがない場合は、いわゆるフーリエ変換極限（ＴＬＰと略す）の場合であり、パルス幅Δt_pとスペクトル幅$\Delta \nu$の積は、$\Delta t_p \cdot \Delta \nu = 0.32$[2]となる。Ａ＝0.3では$\Delta t_p \cdot \Delta \nu = 0.65$となり、ＴＬＰの場合の約２倍、Ａ＝0.8では$\Delta t_p \cdot \Delta \nu = 1.23$となり、ＴＬＰの場合の約４倍となる。これらのＡと$\Delta t_p \cdot \Delta \nu$の関係は、後にまとめて 表４－１に示す。ところで、従来、受動モード同期ＣＷ色素レーザーから得られたほぼＴＬＰに近いと称する超短光パルスの$\Delta t_p \cdot \Delta \nu$の値としては、0.4～0.8[9]、[12]のものが多い。これが、単純なチャープで起っているものとすれば、対応するＡの値で0.1～0.5程度に相当する。(b)の強度および位相の相関波形から、コントラスト比１：３をもつ強度相関波形（白破線）は、Ａの変化に依存しないが、コントラスト比１：８を有する位相相関波形（縦線群）は、式（4.1）の$S(\tau)$そのものであって、Ａの変化に対して、その形および位相相関の幅（干渉の生じる領域）が、敏感に変化することがわかる。このことについての詳細は後に４－５－２で行う。

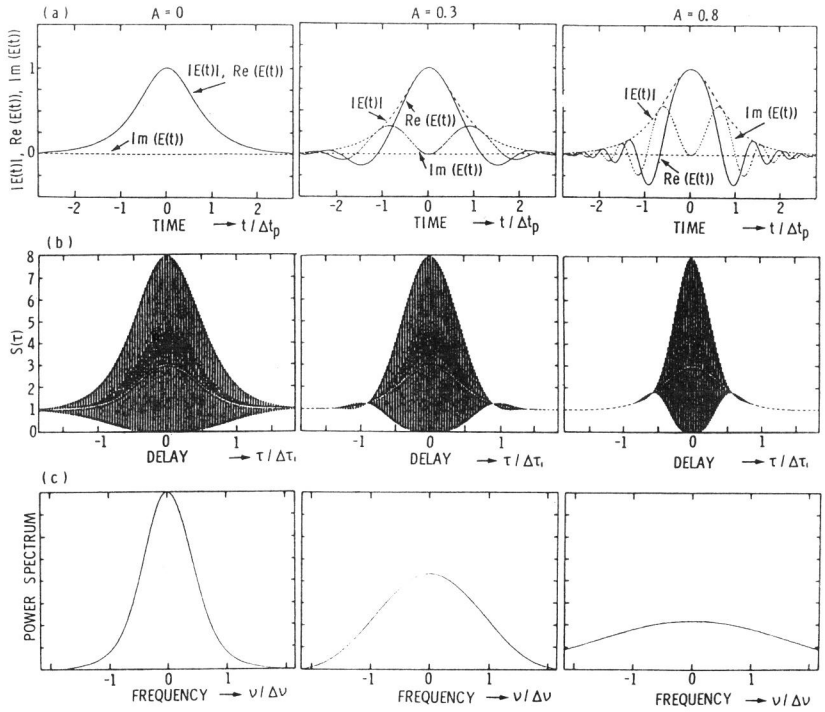

図４－２　光パルスの(a)電界、(b)相関波形Ｓ(τ)、(c)パワースペクトル。(b)中、白破線は、１：３のコントラスト比をもつＳ(τ)の強度相関波形、縦線群は、１：８のコントラスト比をもつ位相相関波形。左：Ａ＝０、中：Ａ＝0.3、右：Ａ＝0.8

４－４　強度・位相相関器の構成[3]、[10]、[11]、[14]、[21]、[23]

ここでは、上述した強度（実時間測定を含む）および位相の相関波形を測定するために試作した相関器の構成についての検討を行う。

４－４－１　動作モード

図４－１の試作した相関器を用いて実験を行った。図に示す様に、レーザー共振器への不必要なパルスのフィールドバックを避けるために、ダブル・パス・マイケルソン干渉計配置を採用した。[13] マイケルソン干渉装置は、重量のある基台の上に組み立てられている。一方のアームには、スピーカーＳＰによる往復運動を利用した実時間モニター用掃引装置が、また他方のアームには、圧電素子による微動機構ＰＺＴ（Burleigh 社、ＰＺ－５５５ Inchworm）を用いた高・低２段切換掃引装置が取り付けられている。この干渉装置は、次の２つの動作モードが可能である[11]、[14]。

(1) 実時間強度相関波形測定モニターモード

(2) 強度・位相相関波形測定モード

(1)の動作モードには、ＳＰによる掃引装置が用いられる。一方、(2)のモードには、ＰＺＴによる掃引装置が用いられる。さらに、(2)のモードでは、ＰＺＴの掃引速度が、外部信号により高・低2段に切換られ、これによって強度と位相の相関波形を見かけ上分離して、同時に測定することができる。

このように、外部から振動を受け易いＳＰによる実時間モニターと安定性を必要とする位相相関とを両立させることに次に述べるような工夫を必要とした。

4－4－2　スピーカーを用いた実時間モニター

一般に、超短光パルス発生には、モード同期レーザーの種々のパラメーター、例えば、励起強度、可飽和吸収体の濃度、ミラーアライメント等の最適化が必要である。それらの調整に、実時間でモニターとして使える相関波形測定器があれば、実際の測定上非常に有用であり、最近、このような目的で種々の方法による実時間強度相関波形測定モニターが報告されている[15]～[19]。ここでは、干渉装置として一体化し易いという点で、ＳＰによる方法を採用した[16]。ＳＰをこのような目的で使用する場合の問題点は、

(1) ＳＰボイスコイルの運動の直線性。

(2) その駆動入力に対する移動距離の直線性。

(3) 外部よりの振動に対する安定性。

等である。通常、入手できる市販スピーカーでは、以上の諸点から充分な性能を期待できなかったので、市販スピーカー（フォステックス、ＦＷ－１００）をベースにして、改造したものを使用した。その構成図を図4－3に示す。改造の主要点は、コーン紙を取り除き、直線運動を確実にするため、ボイスコイル円筒を延長し、これに強化したダンパーを2重に取り付けたことである。ボイスコイルの運動の直線性は、その先端にミラーを取り付け、それによる反射ビームスポットの充分遠距離におかれたスクリーン上での動きで、チェックした。通常の市販形スピーカーでは、この反射ビームスポットは、一般に、微少なリサージュ運動を示すが、改造スピーカーでは、リサージュ運動が見られなかった。また、特に、動作モード(2)の強度・

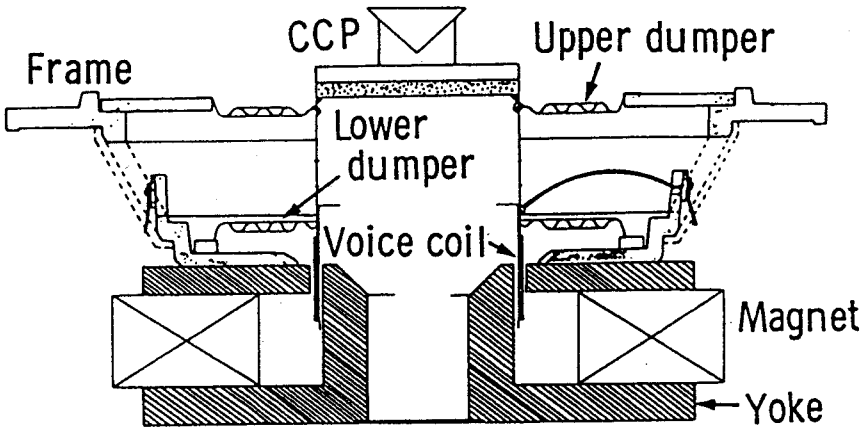

図４－３　改造したスピーカーの断面図

位相相関波形測定中ＳＰは固定されなければならない。これに対しては、ボイスコイルを短絡することにより対応した。この時の安定性については、４－５－１で検討する。改造スピーカの掃引感度は、６０H_z で２㎜／Ｖであり、これは掃引レンジに直して１３ps／Ｖに相当し、超短光パルスの調整モニターとして充分である。駆動周波数としては、６０H_z を用いた。干渉計構成としては、ルーフ構成、コーナー構成のものが必要となるが、ここでは、調整の容易性を考慮して図４－１に示すようにコーナーキューブプリズムＣＣＰを採用した。用いたＣＣＰは１㎝径、ＢＫ７製で、平行誤差偏角１秒以内のものであり、無反射コーティングが施されている。さらに、その表面での残留反射ビームを分離するために、入射ビームに対して少し傾けて取り付けてある。ＣＣＰを取り付けた後のＳＰボイスコイルの入力電圧に対する直線性は、実際に干渉計として動作させ、その干渉縞の移動で確認した。

４－４－３　圧電掃引装置

干渉計の一方のアームには、強度・位相相関波形測定用の高・低２段切換可能なＰＺＴ掃引機構が設置され、これに、ＳＰのアームに取り付けたと同じＣＣＰが取り付けられている。ＰＺＴは、可動距離２５ mmにわたって２０nm ／ステップの分解能をもっており、その掃引速度は、0.0１ μm／ｓ～0.6 mm／ｓ　と可変であ

る。高・低２段の掃引速度の切換、掃引方向の指示等は、マイクロコンピューターによって制御される。試作装置では、Ｘ－Ｙレコーダを含む回路系全体の時定数を３００ｍｓとした時、ＰＺＴの掃引速度が１５μｍ／ｓ以上で、位相成分は測定されず強度相関波形だけが測定される。そこで、以下には高・低２段の掃引速度を高速で３０μｍ／ｓ、低速で0.０３μｍ／ｓに設定してある。なお使用したＰＺＴの掃引レンジは、可動距離２５ｍｍから１６７ｐｓである。干渉計部分全体は、空気の擾乱や外部の振動等を取り除くために遮蔽箱の中に納められている。

以上が干渉計部分の構成であるが、これによって相関測定のための遅延τを与えられた２個のパルスが平行に非線形光学結晶であるＫＤＰ上に焦点距離５ｃｍのレンズＬで集光される。用いたＫＤＰは、厚さ１７０μｍ、４５°ｚ－６０°ｙ′カットの薄板である。[20] 発生した第２高調波は、基本波をカットするフィルターＦ（東芝、UV－Ｄ３３Ｓ、３枚）を通過後、光電子増倍管ＰＭＴ（浜松テレビ、Ｒ２１２）で光電検出される。ＰＭＴの検出信号は、ＳＰによる実時間強度相関波形測定の場合には、直接オシロスコープでモニターされ、一方、ＰＺＴ掃引による強度・位相相関波形測定では、ロックインアンプで同期検波後、Ｘ－Ｙレコーダ上で記録される。また、ＰＺＴ掃引の動きとＸ－Ｙレコーダ上の動きとの比例関係は、マイクロコンピューターで制御され、かつ同期がとられている。

４－５　実験結果[3]、[10]、[11]、[14]、[21]、[23]

ここでは、上述した強度（実時間測定を含む）および位相相関波形を測定するために試作した相関器を用いて得られた実験結果を示す。

４－５－１　干渉フリンジの観測[21]

実験に用いた超短光パルスは、第２、第３章でも述べた、通常のローダミン６ＧとＤＯＤＣＩとの組み合わせによる受動モード同期レーザーから得た。特にパルスの安定性に重点を置いて、共振器中に厚さ３５０μｍのリオ・フィルターを挿入した。このため、得られたパルスはやや広く、発振波長６０５ｎｍ付近で、約1.5ｐｓであった。光パルス観測の補助的手段として、高速光検出器（立ち上り～５０ｐｓ）とリニアセンサー付分光器[22]を用いた。

試作した相関器のＰＺＴによる低速掃引で観測されたτ＝０付近の干渉フリンジを図４－４に示す。この場合、ＰＺＴの掃引速度は、0.0１μm／ｓである。図の干渉フリンジの左半分では、ＳＰのボイスコイルの両端子が開放されており、右半分では、短絡されている。ボイスコイル開放時には規則的なフリンジパターンが全く得られていないことから、この時、ＳＰは、波長以上の振幅で振動していることがわかる。また、ボイスコイル短絡時には、ＳＰの振動は充分、抑制され、目的としている相関波形の測定のためには、充分よく固定されていることがわかる。得られた干渉フリンジの鮮明度は９２％、また、この間の干渉計の安定性は、観測された干渉フリンジの周期の変化から読みとることができ、標準偏差値で約８％である。次に、非線形光学結晶であるＫＤＰを取り除き、またＳＰの代わりに、ＣＣＰを固定微動装置に取り付け、これとＰＺＴで構成される干渉計で測定した時の同様な干渉のフリンジパターンを図４－５に示す。図において、干渉フリンジの左半分は、

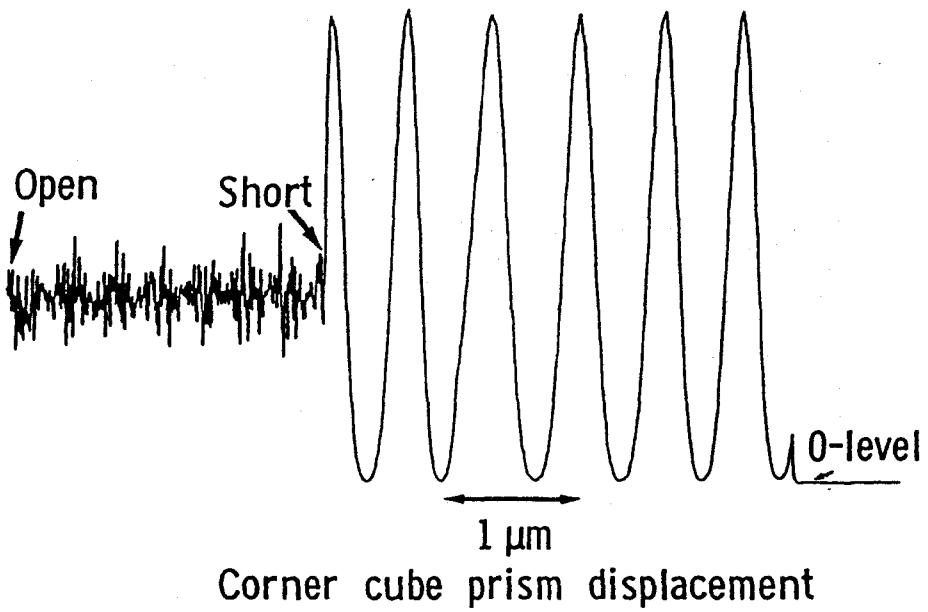

図４－４　ＫＤＰ結晶通過後の干渉のフリンジパターン。干渉計は、ＰＺＴとＳＰで構成されている。

干渉計の掃引がない場合で、このシステムの機械的安定性は、２分間の観測時間でλ／５０ 以下であることが読みとれる。右半分は、図４－４と同様で、ＰＺＴの低速掃引で観測された干渉フリンジパターンである。この場合の干渉フリンジの鮮明度は８７％、観測された干渉フリンジの周期の変化の標準偏差は、約６％である。以上の結果から、試作した相関器の安定性と分解能は、強度相関測定にはもちろん、位相の相関測定にも充分であることがわかった。また、図４－４の干渉のフリンジパターンから、強度相関波形モニターモードと位相相関波形測定モードを一台の干渉計において併立させることが可能であることも確認できた。

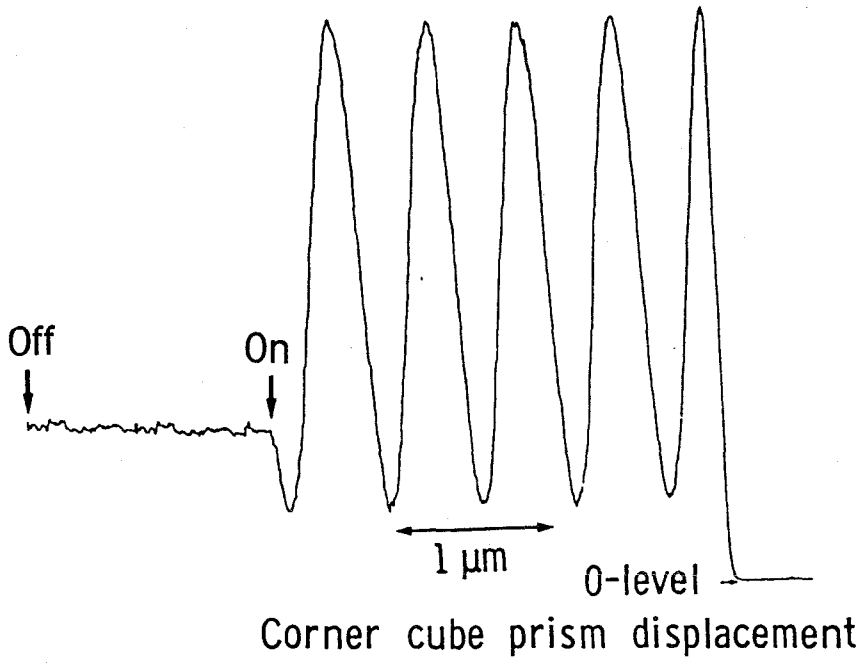

図４－５　ＫＤＰ結晶を取り除いた時に得られた干渉のフリンジパターン。
干渉計は、ＰＺＴと固定されたＣＣＰで構成されている。

４－５－２　強度・位相の相関波形

４－５－１で述べたＣＷ色素レーザー装置からの光パルスを、この相関器を用いて観測した結果を図４－６に示す。(a) は 、ＰＺＴの高速掃引と低速掃引との交互

の繰り返しによる強度および位相相関波形の同時測定の一例である。強度と位相相関波形が、見かけ上分離して測定できることがわかる。強度の相関波形（図中のベル形の実線）では、そのコントラスト比は1：3、また、位相相関波形（多数の縦線群）では、そのコントラスト比は1：8となっており、被観測光パルスが4－2で述べた完全モード同期パルスであることを示している。各縦線は、図4－4での干渉縞を横軸方向に圧縮して記録したことに対応している。また、(b)は、これに対応するスペクトルである。発振中心波長は605nm、スペクトルの半値全幅は、$\Delta\lambda=11$Å である。(a)の強度相関波形から、相関関数の半値全幅は $\Delta\tau_I=2.1$ps と読みとれ、パルス時間波形を sech^2 形と仮定すれば、パルス幅 Δt_p は、$\Delta t_p=\Delta\tau_I/1.55=1.4$ps となる。したがって、この場合のパルス幅・スペクトル幅積は、$\Delta t_p=1.4$ps、$\Delta\lambda=11$Å を用いて、$\Delta t_p\cdot\Delta\nu=1.20$となり、この値は sech^2 形のTLPの値0.32のほぼ4倍に相当する。

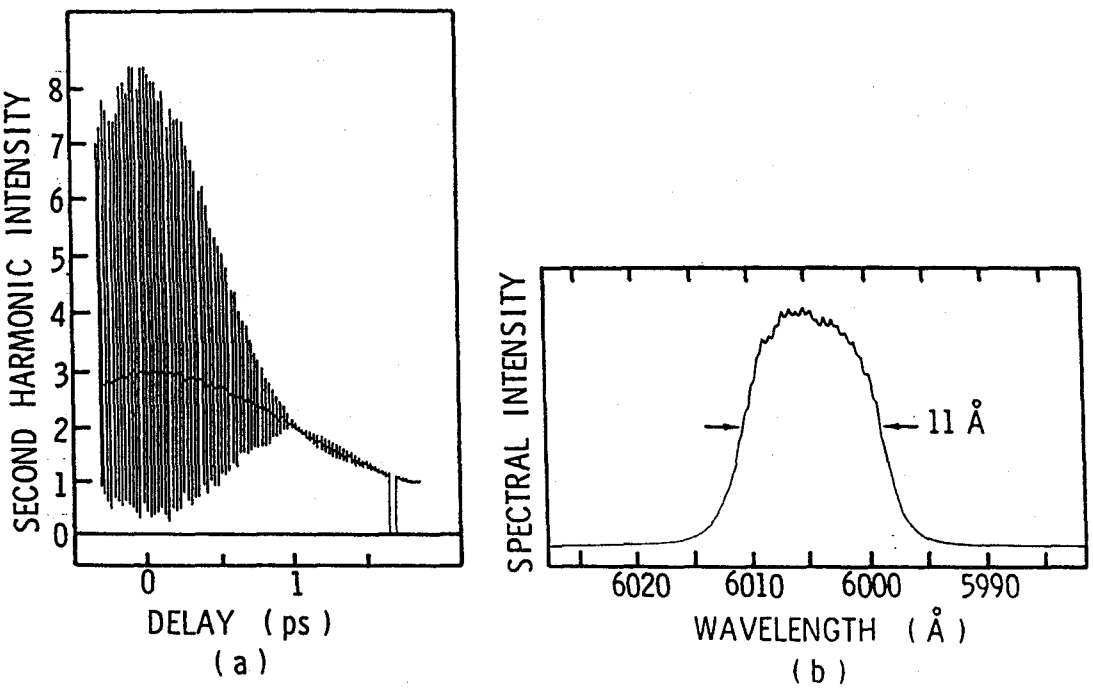

図4－6　(a)観測された自己相関波形と、(b)対応するパワースペクトル。
(a)中、ベル形のカーブは、1：3のコントラスト比をもつ強度相関波形、縦線群は、1：8のコントラスト比をもつ位相相関波形。

図４－６と同様な完全なモード同期パルスに対する測定結果を図４－７に示す。

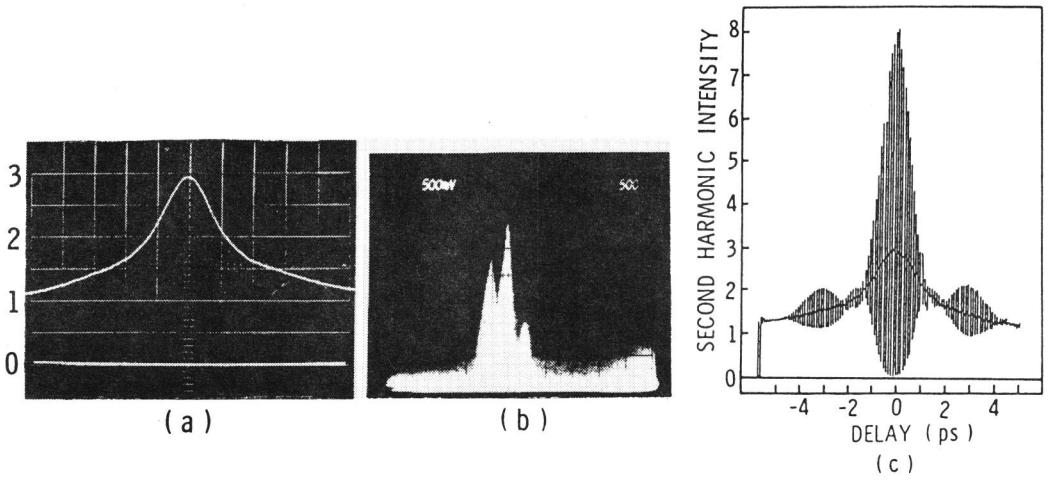

図４－７　(a)実時間モニターモードによる強度相関波形、水平軸：1ps／div.
パルスを $sech^2$ 形と仮定してパルス幅は 1.6 ps (b)対応するパワースペクトル、水平軸：6Å／div.、発振波長：６０５nm
(c)完全なモード同期パルスの場合の自己相関波形

(a)は、ＳＰを用いた実時間モニターによるオシロスコープ上の強度波形の一例である。コントラスト比は、１：３で完全なモード同期パルスが得られていることがわかる。また(b)は、これに対応するスペクトルで、発振波長は６０５nm、スペクトルの半値全幅は、$\Delta\lambda = 9.8$ Å で３つのピークをもっている。また、(a)の強度相関波形から、相関関数の半値全幅は $\Delta\tau_I = 2.4$ ps と読みとれ、パルス時間波形を、$sech^2$ 形と仮定すれば、パルス幅 Δt_p は、$\Delta t_p = \Delta\tau_I / 1.55 = 1.6$ ps となる。したがって、この場合のパルス幅・スペクトル幅積は、$\Delta t_p = 1.6$ ps、$\Delta\lambda = 9.8$ Å を用いて、$\Delta t_p \cdot \Delta\nu = 1.24$ となり、この値は $sech^2$ 形の ＴＬＰ 時の値 0.32 のほぼ４倍に相当する。次に、(c)は、ＰＺＴの高速掃引と低速掃引との交互の繰り返しによる強度および位相相関波形同時測定の一例である。強度と位相相関波形が、見かけ上分離して測定できることがわかる。強度の相関波形（図中のベル形の実線）では、そのコントラスト比は１：３、また、位相相関波形（多数の縦線群）では、そのコントラスト比は１：８となっており、被観測光パルスが完全モード同期パル

スであることを示している。この場合も各縦線は、図４－４での干渉縞を横軸方向に圧縮して記録したことに対応している。

次に、強度・位相相関波形のいま１つの記録例として図４－８は、不完全なモード同期パルスの観測結果を示している。この場合、強度相関波形のコントラスト比は、(a)で１：1.5、(b)で１：２、位相相関波形のコントラスト比は、(a)で１：４、(b)で１：５程度である。また、図４－６(a)、図４－７(c)に比較して位相相関波形の半値幅が極端に狭くなっており、この被測定パルスが、不完全なモード同期パルスであることを示している。

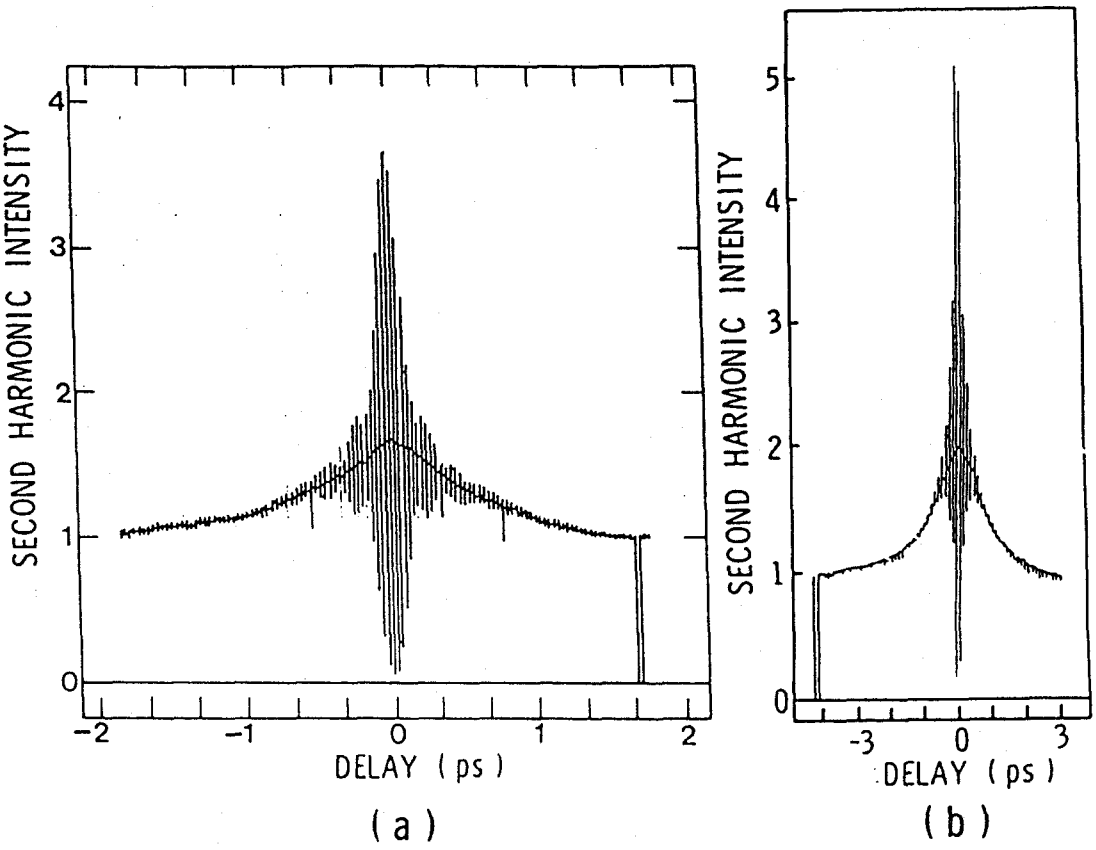

図４－８　不完全なモード同期パルスの場合の観測された自己相関波形
(a)強度相関波形のコントラスト比１：1.5の場合
(b)１：２の場合

4－5－3　検　　討

4－5－2で得られた実験結果を先の4－3で述べた計算機シミュレーションの結果と比較して検討する。ここでは、図4－7の実験結果についてだけ検討をする。4－5－2でも触れたが、通常、パルスがTLPになっているかどうかの判定は、強度の相関と同時に発振スペクトルを記録することによって行われてきている。すなわち、パルス幅・スペクトル幅積を図4－7の(a)、(b)から読み取って求める。その結果は先述したように $\Delta t_p \cdot \Delta \nu = 1.24$ である。一方、図4－7(c)に示すように強度と位相の相関を同時測定した場合には、それらの波形だけを用いて以下の手続きによりTLPの判定ができる[23]。まず、パルス中の位相相関の程度を表わす指数 f_C を次式で定義する。

$$f_C \equiv (\Delta\tau_\phi / \Delta\tau_I) / (\Delta\tau_\phi / \Delta\tau_I)_0 \qquad (4.6)$$

ここで、$\Delta\tau_\phi$、$\Delta\tau_I$ は、それぞれ位相および強度の相関波形の半値全幅である。また、$(\Delta\tau_\phi / \Delta\tau_I)_0$ は、パルス中の周波数変動がない場合の $(\Delta\tau_\phi / \Delta\tau_I)$ である。数値計算より、sech^2 形パルスの場合、$(\Delta\tau_\phi / \Delta\tau_I)_0$ は1.268と求められる。また、sech^2 形の場合についてのAに対する f_C および $\Delta t_p \cdot \Delta \nu$ の値を数値計算により求めておく。その結果は表4－1に示すとおりである。

表4－1　Aに対する f_C と $\Delta t_p \cdot \Delta \nu$ の値

A	f_C	$\Delta t_p \Delta \nu$
0	1.000	0.315
0.1	0.968	0.400
0.2	0.888	0.527
0.3	0.819	0.654
0.4	0.741	0.767
0.5	0.681	0.879
0.6	0.640	0.992
0.7	0.589	1.105
0.8	0.558	1.232
0.9	0.523	1.345
1.0	0.491	1.457

次に、図4－7の強度・位相相関波形について $(\Delta\tau_\phi / \Delta\tau_I)$ を図から読みとると0.69となり、これよりこの時の f_C は、$f_C = 0.69 / 1.27 = 0.55$ となる。この f_C の値は、表4－1からほぼA＝0.8に相当し、対応する $\Delta t_p \cdot \Delta \nu$ 積は1.23と求められる。すなわち、図4－7(c)の強度と位相の相関波形から f_C を通して得た $\Delta t_p \cdot \Delta \nu$ の値と、先に図4－7(a)、(b)の強度とスペク

トル波形から得た $\Delta t_p \cdot \Delta \nu$ の値は、ほぼ一致することがわかる。また、このA＝0.8に対応する計算機シミュレーションは、図4－2(b)中に示されている。図4－2(b)と図4－7(c)とを比較すれば、干渉の生じる範囲がよく一致していることがわかる。以上の結果より、比較的単純な線形チャープを仮定すると、測定された位相相関波形、スペクトルのいずれをも矛盾なく説明することができ、$\Delta t_p \cdot \Delta \nu$ 積のＴＬＰからのずれを、ほぼ線形チャープの存在によるものと推定することができる。

図4－7(c)に見られるサテライトは、図4－7(b)に示すスペクトル中の3つのピークに対応して、現われるものと考えられる[11]。一方、図4－2(b)のシミュレーションの結果に見られる微小なサテライトは式（4.1）の位相関係を与える項中に含まれる位相差要素 $\phi(t-\tau)-\phi(t)$ のために、$|\tau|$ の大きな値において相関積分が一旦0を通過することによるものである[23]。図4－6(a)の実験結果では、シミュレーションの結果に見られる微小なサテライトが現われている。一方、この微小なサテライトは、図4－7(c)中ではスペクトル成分の分裂によるサテライトにかくされているものと考えられる。

4－6 結　　言

パルスの強度と位相の相関の同時測定が可能な相関器について検討を行った。この相関器について得られた結果は、次のようにまとめられる。

(1) スピーカーの掃引により実時間で強度相関波形がモニターでき、ＰＺＴの高・低速交互掃引により、位相と強度相関とを分離しつつ同時に測定でき、かつ、それらの機能を両立させることが可能である。

(2) 位相・強度相関の同時測定の結果から、ＴＬＰの判定を迅速に行なうことができる。

(3) 試作した相関器は、位相成分を測定するのに充分安定である。また、機械的掃引を採用している点で小形で、かつ、取り扱いが容易である。

(4) この相関器によって測定されたパルスの特性をその内部に直線的な周波数変動を含むと仮定することにより説明することができる。

このような特徴を有する相関器は、今後、超短光パルスのＴＬＰの迅速なチェックおよびそれらの応用上、特に有用なものと考えている。

第5章　サブピコ秒光パルスの応用[14),(15),(22),(23),(24)]

5－1　緒　　言

一般に物質の励起状態の緩和過程には、ミクロな粒子の内部エネルギーや運動量を変えるもの等いろいろあるが、特殊な例外を除いてすべて量子状態の位相の変化をもたらす。またほかの性質は変えずに位相だけを変える過程もある。つまり、すべての緩和過程は原則として位相変化を伴うものである。この様な位相の乱れは物質の吸収または発光スペクトルに直接反映し、T_2^{-1} の大きさのスペクトル広がりを生ずる。これを均一広がりと呼び、その時定数を均一広がり位相緩和時間T_2で表わす。また、実際の物質のスペクトルにはほとんどの場合緩和以外の原因による広がりも含まれている。(1)気体の場合のドップラー効果　(2)固体中の結晶場の空間的不均一性　(3)液体中の分子場の空間的不均一性　(4)エネルギー準位のサブレベル構造、分布構造　(5)同位体の混合等によるものである。つまり遷移が単一周波数でなく分布をもつ効果であり、これを不均一広がりと呼び、その時定数を不均一広がり位相緩和時間T_2^* で表わす。特に、液相、固相等の凝縮相における均一位相緩和時間、不均一位相緩和時間は、サブピコ秒あるいはフェムト秒領域に入るものが多く、これを直接測定することは、非常に困難で、それがために種々の間接的な方法に頼らざるを得なかった[(1)～(6)]。

従来、時間領域でのT_2 の測定は、主に希薄な気体原子や、特殊な固体中のイオン等について観測されてきた。Liao 等[(7)]は、二光子励起とプローブパルスを用いてNa原子の電子励起状態のT_2 を測定した。しかし、これはナノ秒領域で行われたものである。ピコ秒領域での最初の実験は Hesselink 等[(8)]によって、極低温での分子結晶を試料にして行われた。これは、フォトンエコー[(9)]を利用したもので、エコーの検出法として可変遅延時間をもつプローブ光とエコーパルスとの光混合を用いたことが特徴的である。これによってエコーの存在とその時間特性が確実に捉えられ、その減衰特性からT_2 の値のみならず温度特性や緩和機構に至るまで調べられた。また、松岡等[(10)]は、位相共役四光波混合の場合と同じビーム配置を与え、入射光の一つと逆方向にエコーを発生する方式を実現した。そして、実験は、Na 原子気体に対して行われ、その衝突緩和特性が詳しく調べられた。最近、Hu 等[(11)]は、前方エコー方式を用いて、低温における半導体のピコ秒フォトンエコーを初めて観測した。これは、

GaP：N の束縛励起子を対象にしたもので、T_2 のN濃度依存性などが見いだされた。また、矢島等は、フォトンエコーの方法をもっと一般化した非線形分光法として過渡的空間パラメトリック法を考案し、[12]色素分子の極超短時間の緩和情報を得ることを試みた。その結果、0.1ps 以下の時間領域での測定もある程度可能になった[13]。

このように、サブピコ秒領域での凝縮相のT_2 の直接測定は、まさに、これから始まろうとしている段階にある。著者らは、このT_2[†]の直接測定を目的として、CW 色素レーザーのように、低強度（ピークパワー１００W程度)レベルで観測可能な新らしい型のコヒーレント効果について検討を行ってきた[14],[15]。

本章では、提案した方法を用いて行った液相における位相緩和時間の直接測定について述べる。まず、**5－2**では、この方法の基本原理を述べ、そのシミュレーションの結果を示す。さらに、この方法を液相有機色素分子に適用し、その有効性を実験的に確認した。**5－3**では、得られた結果と、これまでに周波数領域、時間領域で行われたT_2 測定の結果との比較検討を行う。

5－2　位相緩和時間の直接測定[14],[15],[19],[22],[23],[29]

5－2－1　基本原理

この提案したT_2 測定の基本的原理は、光領域におけるRamsey干渉法[16]を時間領域の測定に応用したものと考えられる。また、ポンプ・プローブ法を位相緩和測定に応用したと見ることもできるし、あるいは、コヒーレントなパルス伝搬の利用、すなわち有限な面積をもつパルスと零の面積をもつパルスとのコヒーレントな光透過特性の差を利用したと見ることもできる[17],[18]。

まず、図５－１に、ある種の干渉装置を通過後、作られるコヒーレントなダブルパルス間の位相関係と対応する電界のエンベロープを図式的に示す。(a)は、第１のパルスと第２のパルス間の位相関係が同相の場合、(b)は、逆相の場合を示す。ここで、Δt_p はパルス幅、τ_d は２つのパルス間の遅延時間を示している。次に、図５－２に提案するT_2 の直接測定の原理説明図を示す。CW色素レーザーからのパルス列は、ある種の干渉計、ここではマイケルソン干渉計を用いて、図５－１に示し

[†] 以下のT_2 は、不均一位相緩和時間T_2^*も含めて、位相緩和時間と呼んでいる。

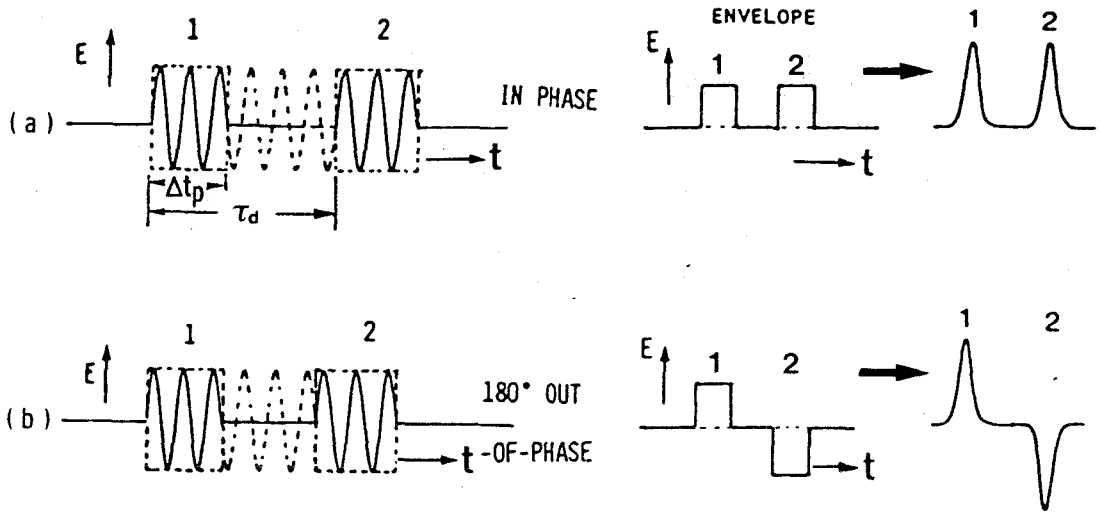

図５－１　２つのパルス間の位相関係と対応する電界のエンベロープ
(a)同相の場合　(b)逆相の場合、Δt_p：パルス幅、τ_d：パルス遅延時間

たような相互にコヒーレントなダブルパルス列を作り出す。作られたこれらのダブルパルスは、測定したいT_2のサンプル上に平行配置で集光される。そして、第１のパルスでサンプル中に作られた巨視的分極を第２のパルスは、ある遅延の後にこれらを見ることになる。この巨視的分極は、第２のパルスの電界に対して一定の位相差をもっている。ダブルパルス間の各々の電界の相互の位相差によって、第２のパルスは、増幅をうけたりあるいは減衰をうけたりする。これは、第１のパルスによって原子系中に残された分極の位相と第２のパルスの電界の位相関係が、これらの場合について互いに逆転するため、第２のパルスについて、光・原子系間のエネルギー授受の方向が、逆転するためである。増幅は、πの位相差の時であり、一方、減衰は０の位相差の時である。つまり、提案した方法は、サンプル中での同相あるいは逆相のパルスのコヒーレントなパルス伝搬の差を利用するものとしても理解できる。これらの同相、逆相のパルスがサンプルを通過した後の透過波形の一例を図５－３に示す。これは、位相緩和時間$T_2 = 4_{ps}$、パルス幅$\Delta t_p = 1_{ps}$として、パルス遅延時間τ_dをパラメータとして、均一広がりのサンプルに適用した場合のシミュレーションの結果であり、これより同相の場合には、第２のパルスが減衰をうけ、

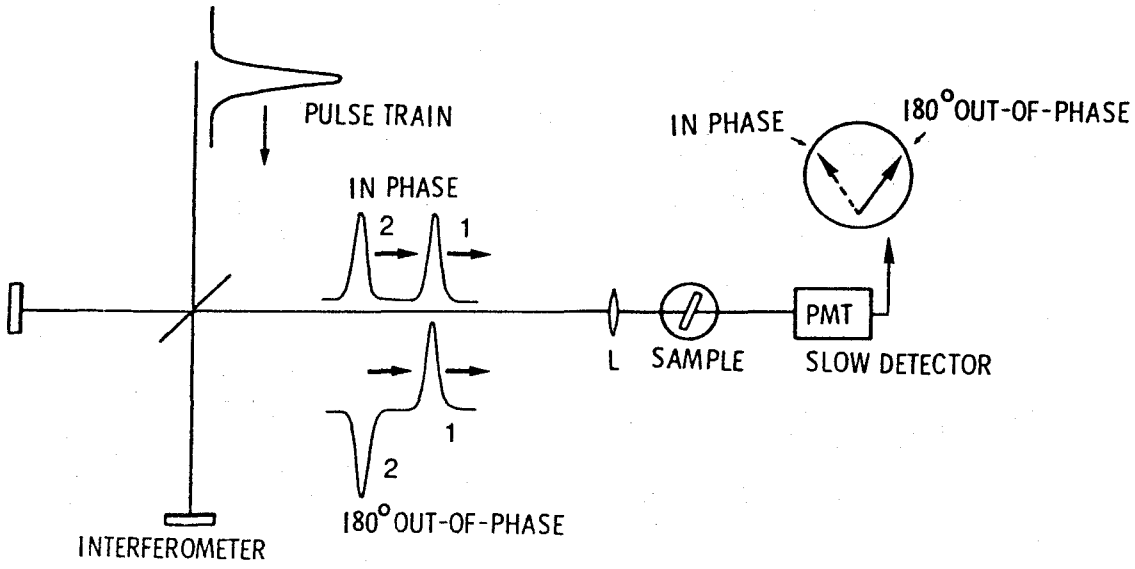

図５－２　T_2 直接測定の原理説明図

一方、逆相の場合には、増幅をうけることがわかる。次に、図５－４に、同相、逆相のダブルパルス列をサンプル上に集光し、平均透過強度をパルス間の遅延時間の関数として、フリンジ成分を含めて検出した時の典型的なフリンジパターンを示す。(a)は、溶媒だけ、つまり、電界の１次の自己相関波形を示す。(b)は、$T_2 = \infty$ のサンプルの場合、(c)は、有限なT_2 のサンプルの場合のフリンジパターンを示す。この１本の縦線がフリンジの鮮明度に対応する。特に、有限なT_2 をもつ サンプルの場合、パルス同志の重なりによる中心部分のフリンジとサンプル中に残された位相記憶の干渉の結果生じるフリンジとが現われている。以後、この両側のフリンジの部分をウィングと呼ぶ。このT_2 を反映した$\exp(-t/T_2)$形の、ウィングの減衰からT_2 を読み取ることができる。 これまで述べてきたのは、パルス幅 $\Delta t_p \ll T_2$ の大小関係が成立する場合である。後述するが、$\Delta t_p \gtrsim T_2$ の場合には、図５－４(c)に示したようなT_2 を反映した顕著な ウィングはフリンジパターン上に現われないが、パルス同志の重なり部分での同相のエンベロープの抑え込みが生じてくる。

５－２－２　基本式と計算機シミュレーション

提案したT_2 直接測定の原理は、サンプル中での コヒーレントなパルス伝搬の差

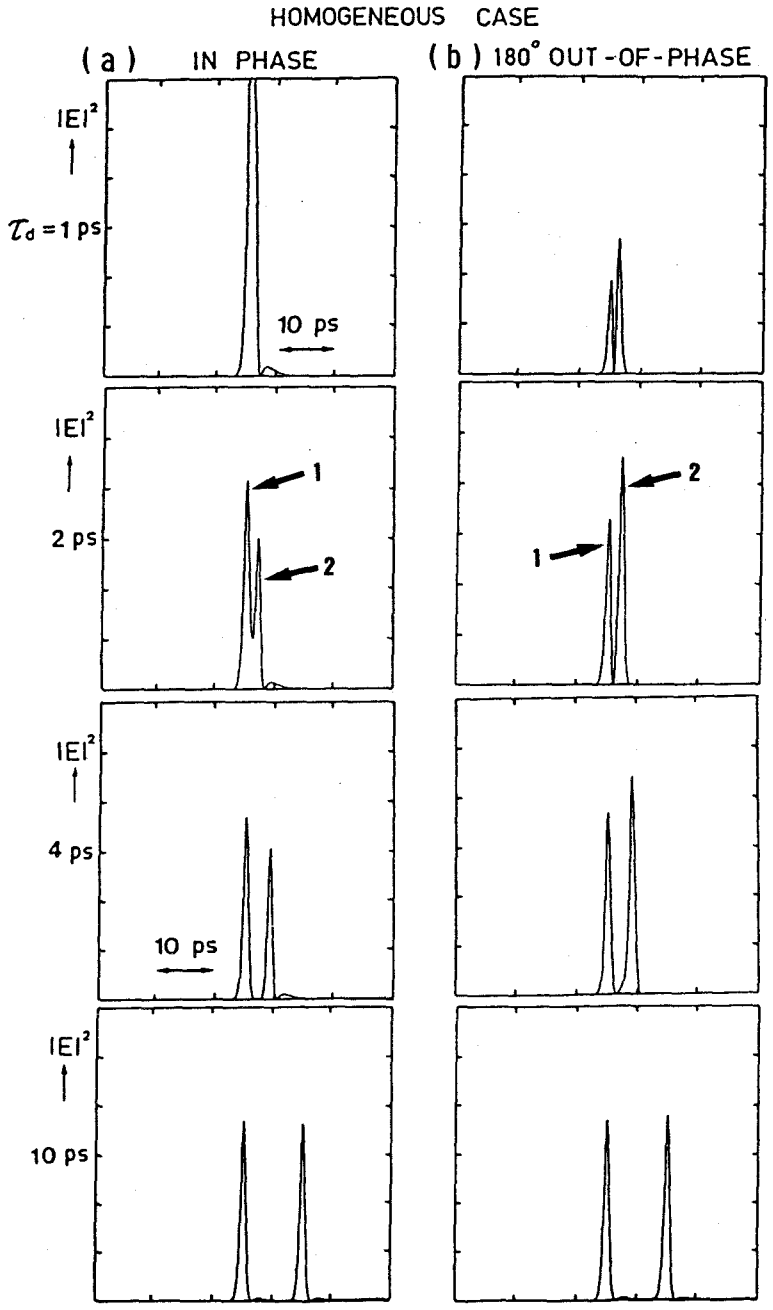

図５－３　均一拡がりの場合のシミュレーションによる透過波形

(a)同相の場合　(b)逆相の場合、$T_2 = 4ps$ ，$\Delta t_p = 1ps$

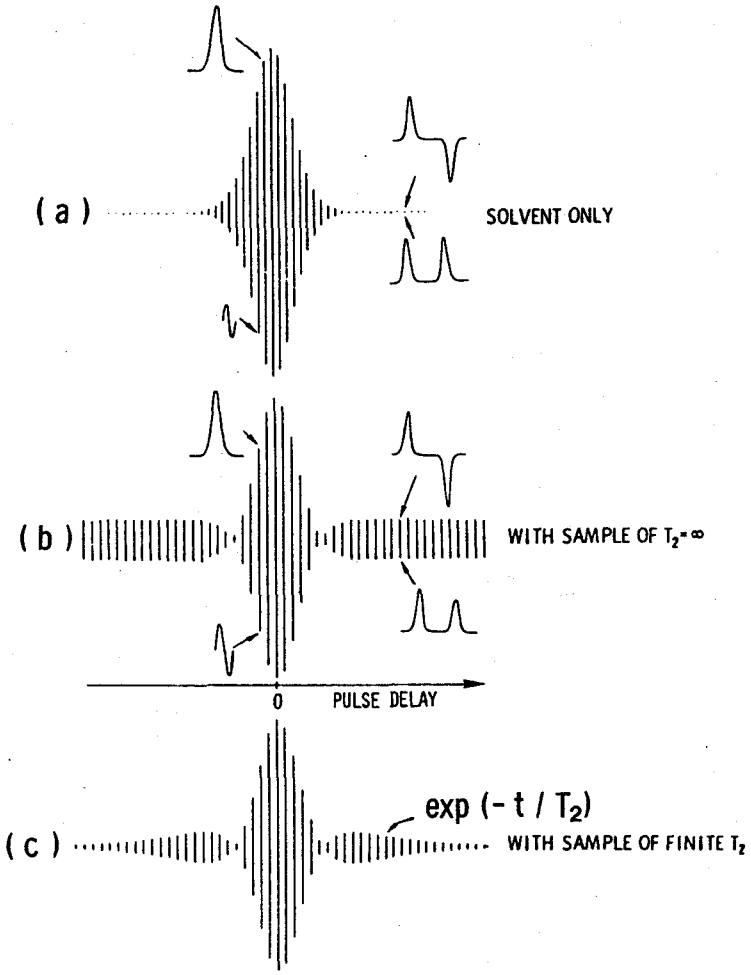

図５－４　典型的なT_2の直接測定の干渉パターン
(a)溶媒だけの場合（電界の１次の自己相関波形）　(b)$T_2=\infty$のサンプルの場合　(c)有限なT_2のサンプルの場合

を利用したものとしても理解できる。以下に述べる基本式を用いて、計算機シミュレーションを行い、この方法の有効性を示す。

共鳴的な原子系中の光パルス伝搬は、通常の近似法により、次の Maxwell－Bloch 形の式で表わされる[20],[21]。

ここで、η：ホスト屈折率、A：パワー損失係数、$|\mu|$：双極子モーメント、S^e：平衡反転分布、S：反転分布、E：電界、P：分極（直角成分）、λ：波長、T_1：縦緩和時間、T_2：横（位相）緩和時間

$$\partial E(z,t)/\partial z = -i\pi/\eta\varepsilon_0\lambda\cdot\langle P(z,t)\rangle_\delta - 1/2\cdot A$$

$$\frac{\partial E(z,t)}{\partial z} = -i\frac{\pi}{\eta\varepsilon_0\lambda}\langle P(z,t)\rangle_\delta - \frac{1}{2}AE(z,t)$$

$$\frac{\partial P(z,t,\delta)}{\partial t} = i\Delta\omega P(z,t,\delta) + i\frac{|\mu|^2}{\hbar}E(z,t)S(z,t,\delta) - \frac{1}{T_2}P(z,t,\delta)$$

$$\frac{\partial S(z,t,\delta)}{\partial t} = \frac{1}{\hbar}\mathrm{Im}[P(z,t,\delta)E^*(z,t)] - \frac{1}{T_1}(S(z,t,\delta) - S^e) \qquad (5.1)$$

さらに、図5－5に示すように、用いたパラメータおよび変数は次式で定義する。

$$\Delta\omega = \omega - \omega_0 \qquad (5.2)$$

$$E = \varepsilon\exp(i\phi) \qquad (5.3)$$

$$P = (P' - P'')\exp(i\phi) \qquad (5.4)$$

$$\langle P\rangle_\delta = \int_{-\infty}^{\infty} P(\delta)g(\delta)d\delta \qquad (5.5)$$

$$g(\delta) = \frac{T_2^*}{\sqrt{\pi}}\exp(-\delta^2 T_2^{*2}) \qquad (5.6)$$

$$|\mu| = \frac{\sigma\varepsilon_0\eta\lambda\hbar}{2\pi T_2} \qquad (5.7)$$

$$S^e = -N_V d \qquad (5.8)$$

ここで、T_2^*：不均一緩和時間、σ：吸収断面積、N_V：アボガドロ数、d：濃度

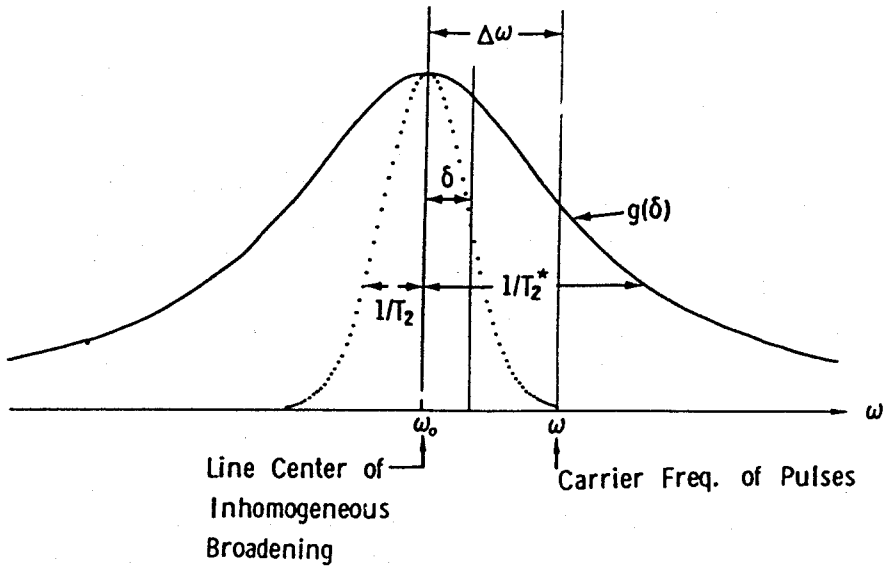

図５－５　用いたパラメータ、変数の定義

ここでのシミュレーションでは、分子系を均一広がりあるいは不均一広がりをもつ２－レベルシステムとして取り扱い、交叉緩和と縮退は考慮していない。また不均一広がりの分布g(δ)は、式（5.6）に示す様にガウス形とし、分極については式（5.5）に示す様に、個々の原子、分子の寄与をδについての重み付きの平均として取り扱い、式（5.1）中に取り入れている。図５－６は、反転分布S、分極の電界に対して同相成分P′、電界に対して90°成分P″の座標で、detuningされた分子のブロッホベクトルの動きを示しており、これから図５－３を説明することもできる。

図５－７、図５－８に、それぞれ媒質が均一広がりの場合、$T_2/T_2^* = 0$，および不均一広がりの場合、$T_2/T_2^* = 5$ のフリンジパターンを示す。図５－７，図５－８の(a)は、溶媒だけの場合、つまり電界の１次の自己相関波形を示す。また、(b)は、サンプルを通過後のフリンジパターンを示す。これらの(b)を比較すると、不均一広がりにより、T_2 を反映したウィングの効果が弱められ、S／N 比の低下をもたらすことがわかる。これらの計算機シミュレーションに用いたパラメータを表５－１に示す。これらのパラメータは通常の受動モード同期CW色素レーザーを想定した場合のパラメータに相当する。ここでは、計算の都合上、パルス幅、位相緩和時間T_2、エネルギー緩和時間T_1を実際の値より大きく取っている。次に、これ

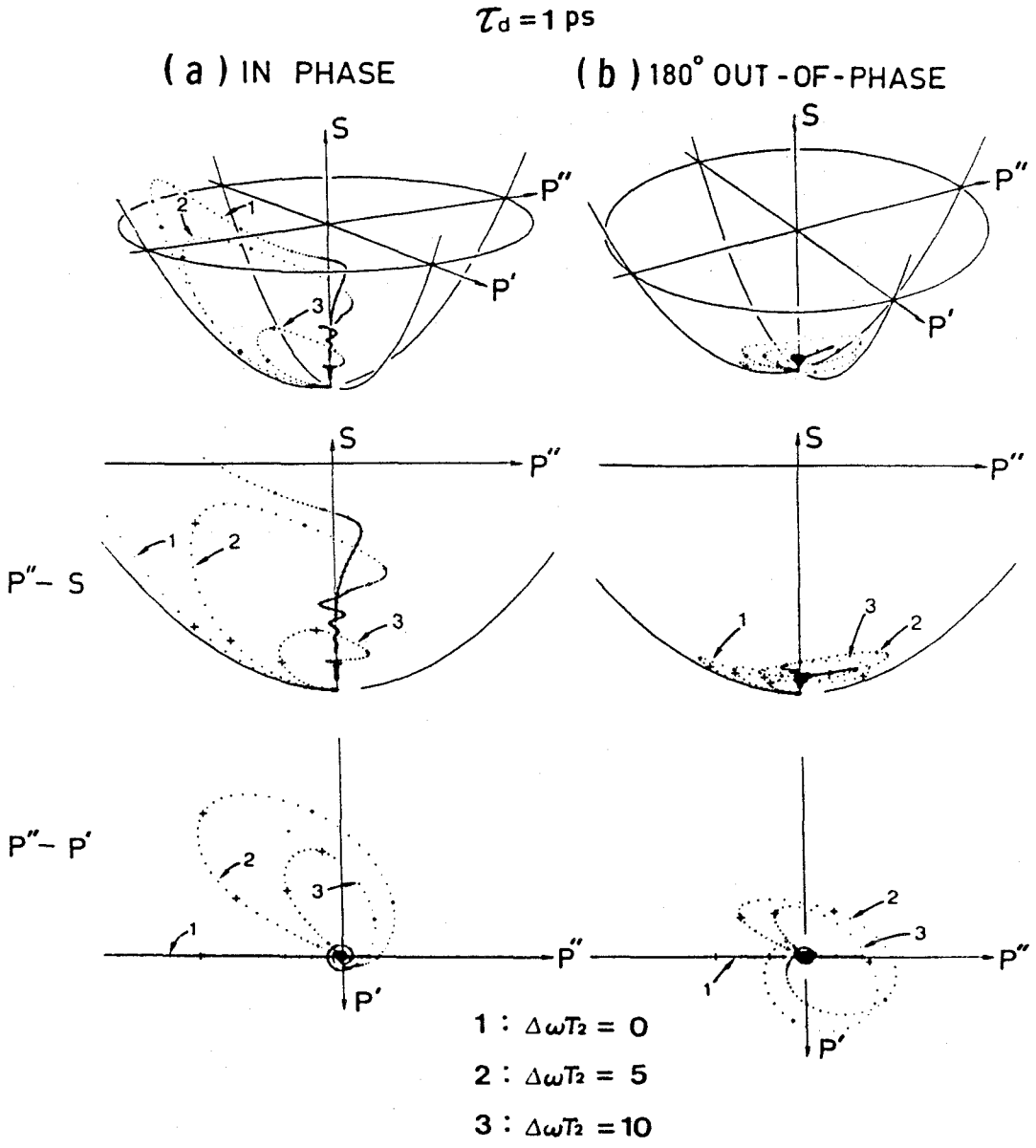

図５－６　ブロッホベクトルの動き　(a)同相の場合　(b)逆相の場合

らの原理説明のまとめとして、図５－９に、フリンジパターンの計算機シミュレーションの結果を示す。ここで用いたパラメータは、$T_2 = 6$ps ，$\Delta t_p = 1$ps 、サンプルの吸収断面積 1×10^{-15} cm^2 、サンプル濃度 6×10^{-3}M、セル厚 60μm、パル

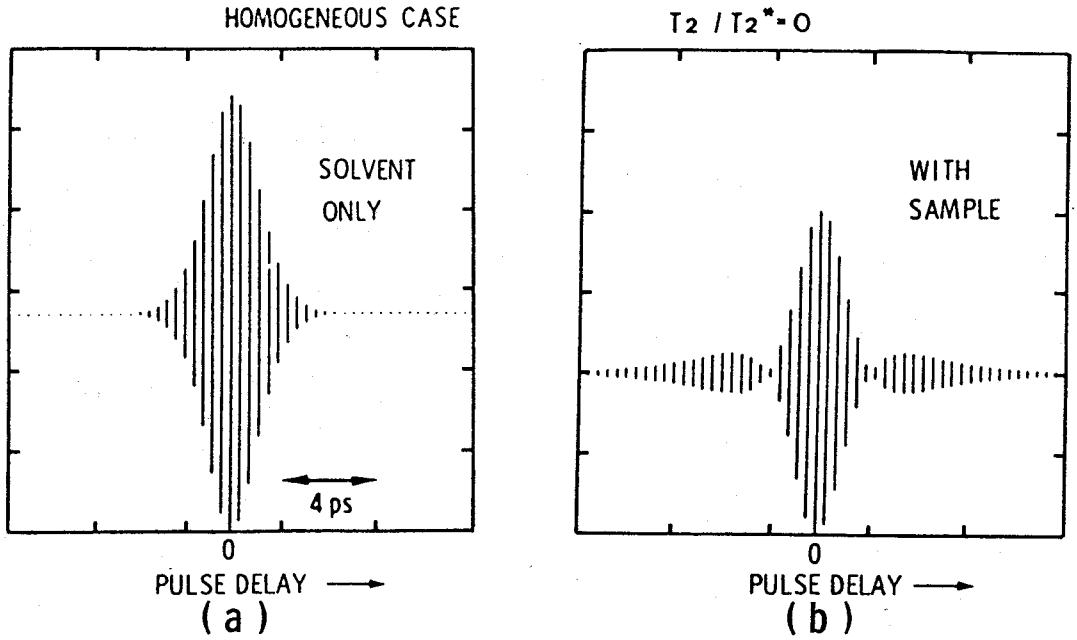

図５－７　均一広がりの場合の干渉パターン

(a)溶媒だけの場合　(b)サンプルの場合

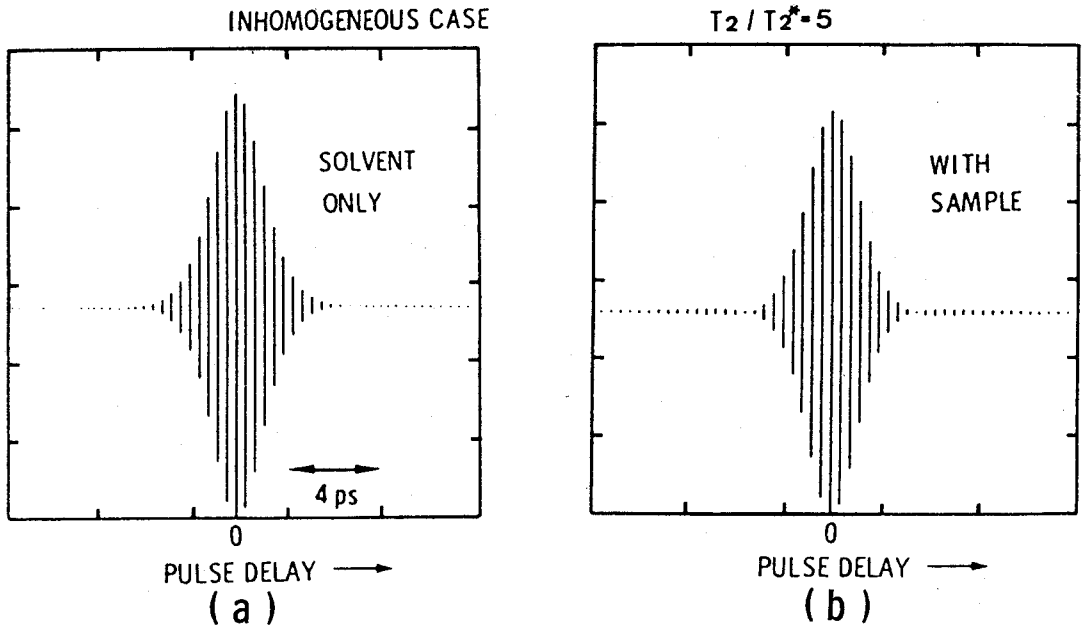

図５－８　不均一広がりの場合の干渉パターン

(a)溶媒だけの場合　(b)サンプルの場合

表５－１　シミュレーションに用いたパラメーター

Input Pulses		
Wavelength	λ	600 nm
Peak Power		100 W
Beam Radius		10 μm
Pulse Waveform		$sech^2$
Pulse Width		1 ps
Pulse Separation	τ_d	1 - 10 ps
Sample		
Transverse Relaxation Time	T_2	4 ps
Longitudinal Relaxation Time	T_1	20 ps
Absorption Cross-section	σ	5×10^{-16} cm^2
Refractive Index of Solvent	η	1.4
Concentration	d	3×10^{-3} M
Absorption Coefficient of Solvent	A	0 cm^{-1}
Cell Length		30 μm
Inhomogeneous Broadening	T_2/T_2^*	0 - 5

スのピークパワー２００W，ビーム径１０μmであり、不均一広がりは含まれていない。これらの値は、実際の液相の色素分子系に対しては当てはまらない。つまり、シミュレーションの図的説明のために選ばれた。図中(a)は、サンプルなしの場合、(b)はサンプルありの場合のフリンジパターンを示している。$\Delta t_p \ll T_2$ の場合には、パルス同志の重なりの部分のフリンジパターンとT_2を反映したウィングが生じる。一方、$\Delta t_p \lesssim T_2$ の場合には、このようなウィングは生じないが、図に示したように、中心のフリンジ部分での同相のエンベロープの抑え込みが顕著になってくる。$\Delta t_p \gg T_2$ の場合には、T_2 に関する情報は得られないが、パルス自身の特性が現われてくる。

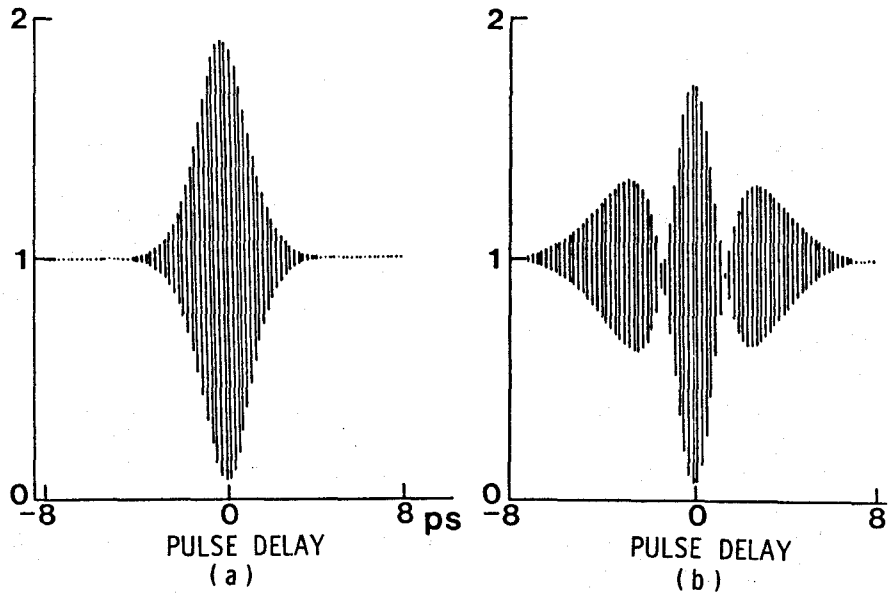

図５－９　計算機シミュレーションによるフリンジパターン
(a)サンプルなし (b)サンプルあり、このシミュレーションは図的説明のために選ばれた

５－２－３　実験構成

図５－10に、T_2 の直接測定に用いた実験構成図を示す。これは、図４－１の配置図と同様なものである。図４－１では、低速・高速の交互掃引をＰＺＴだけで行っていたが、ここで用いたＰＺＴ（Burleigh 社，ＰＺ－５０５ Inchworm）は、速度の切換が出来ないものであったので、微調をＰＺＴにより、また、粗調をステップモーターを利用して行った。用いたステップモーター（山洋電機、１０３－７０８－４）は、分解能 2.5 μm／ステップのものである。これらの干渉計の安定度および分解能については、既に４章で述べた。用いた光パルスは、パルス幅 0.3 ps、発振波長６１０nm、平均パワー１０mW である。これからピークパワーは、１００W 程度であることが計算できる。図に示すように、レーザー共振器への不必要なパルスのフィードバックを避けるために、ダブルパスマイケルソン干渉計配置を採用した。さらに、この配置は、２つの同時的な干渉出力を異なる目的で使用できるという利点を有する。ここでは、一方の出力をT_2 測定に、他方の出力を同時的なＳＨＧ法によるパルス幅測定に用いている。T_2 測定のための出力ビームは、焦点距離５

cmのレンズで、サンプルセル（石英製、厚さ１００μm）に集光される。このサンプルセルは、サンプル中での多重反射を避けるよう、入射ビームに対して大きな角度でセットされている。サンプル通過後のダブルパルス列の平均透過強度レベルは、光電子増培管ＰＭＴ、ロックインアンプ、Ｘ－Ｙ レコーダの組み合わせで検出、記録した。干渉計の粗調の掃引ステップとＸ－Ｙレコーダのｘ軸とは同期しており、粗調掃引の停止ごとに、数波長の微調掃引が行われる。この微調によりチャート上に１本の縦線を作り出す。そして、この縦線が干渉の鮮明度に対応する。このような粗調と微調の繰り返しによって、目的とする干渉パターンを得ることができた。また、これらのすべてのステップは、マイクロコンピューターで制御されている。

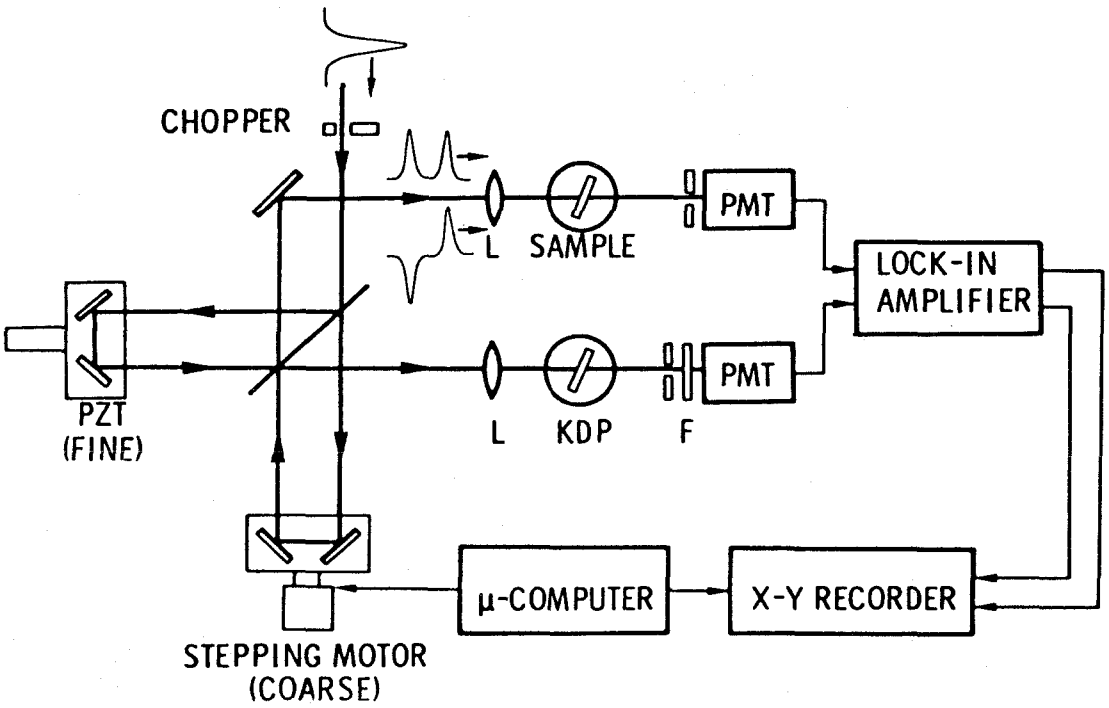

図５－10　T_2の直接測定に用いた実験配置

５－２－４　試　　料

サンプルとしては、用いた超短光パルスの発振波長６１０ｎｍ付近に$S_0 \rightarrow S_1$　の

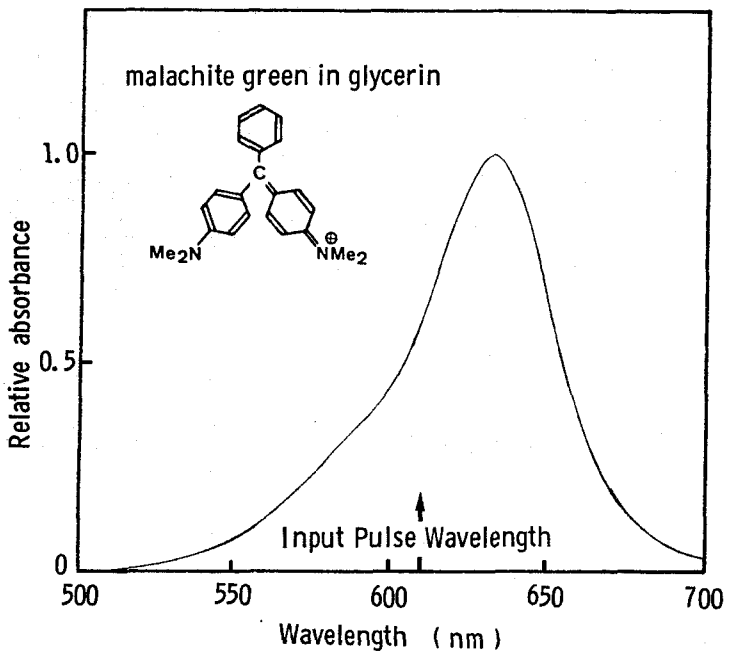

図５－11　実験に使用したマラカイト・グリーン色素の分子構造と吸収スペクトル

吸収帯をもつトリフェニールメタン色素マラカイト・グリーン（M.G.）を種々の溶媒、つまりメタノール、エチレングリコール、グリセリンに溶かしたものを用いた。このM.G.のグリセリン溶媒中での吸収スペクトルを図５－11に示す。このスペクトルは、レコーディングスペクトルメーター（日立，EPS－3T）を用いて測定し、その中に不純物があるかないかのチェックを行った。その結果、グリセリン溶媒中のM.G.の吸収ピークは、６２０nmであった。また、表５－２に、用いた溶媒の構造式および粘性ηを示す。これらの溶媒は、異なる数のOH基を持ち、これが粘性の原因と思われ

表５－２　用いた溶媒の構造式とその粘性（室温）

Methanol	Ethylene glycol	Glycerin
CH_3-OH	CH_2-OH CH_2-OH	CH_2-OH $CH-OH$ CH_2-OH
$\eta = 0.59$	$\eta = 20.9$	$\eta = 945$ cp

るが、お互いに同族体であるために用いられた。粘性は、室温下でのものであり、メタノール0.59cp、エチレングリコール20.9cp、グリセリン945cpである。また、以下の測定に先立って、PMT の直線性のチェック、およびロックインアンプ、X−Y レコーダのレスポンス等についてのチェックを行った。

5−2−5 実験結果

5−2−3で述べた干渉計装置と前節で述べたサンプルを用いて T_2 の直接測定を行った結果について述べる。

図5−12に得られたフリンジパターンを示す。(a)は、サンプル、セルのない場合、(b)、(c)はそれぞれグリセリン溶媒だけの場合、およびメタノール溶媒だけの場合である。これらのフリンジパターンは、セル、溶媒の影響がないことを示すためにと

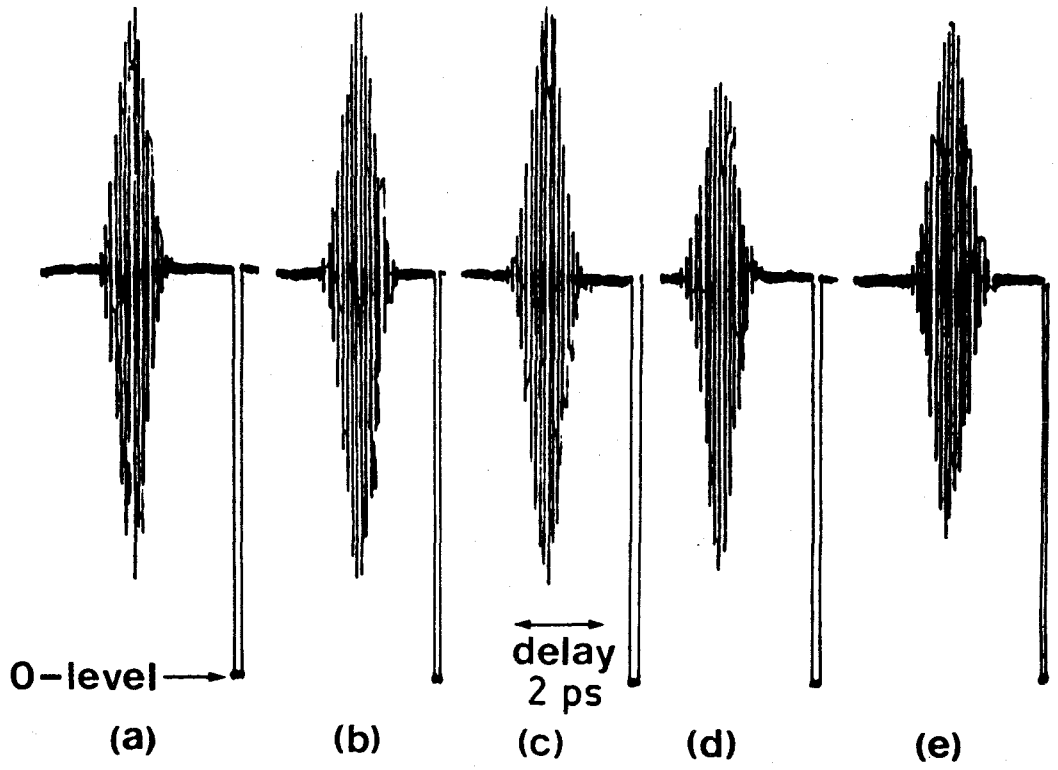

図5−12 実験で得られたフリンジパターン (a)サンプル、セルのない場合 (b)グリセリン溶媒だけの場合 (c)メタノール溶媒だけの場合 (d)グリセリン溶媒中のマラカイトグリーンの場合 (e)メタノール溶媒中のマラカイトグリーンの場合

られた。次に、(d)は、グリセリン溶媒でのM.G.(e) は、メタノール溶媒でのM.G。のフリンジパターンを示している。これらのフリンジパターンは、パルス幅よりも充分に、ダブルパルス対が離れたところ、つまり、ダブルパルスによって干渉が生じないところのレベルを溶媒だけの場合の透過レベルと同じになるようにロックインアンプのゲインを調整して記録したものである。また、用いたサンプルの濃度4.0×10^{-2} Mは、100μmセルで、サンプル中での吸収が約95%に相当するものである。図に示されているように、(d)のグリセリン溶媒でのマラカイトグリーンのフリンジパターンは、同相の部分（上側）が逆相の部分（下側）よりも、より大きな減衰をうけているのに対し、(e)のメタノール溶媒でのマラカイトグリーンでは、このような変化は見られない。

5－2－6　検　　討

得られた実験結果と5－2－1、5－2－2で述べてきたシミュレーションの結果との比較検討を行う。

原理でも述べたように、位相緩和時間T_2と用いるパルス幅Δt_pとの大小関係によって、$T_2 \gg \Delta t_p$ の場合には、T_2を反映したウィングが生じ、$T_2 \lesssim \Delta t_p$ の場合には、このようなウィングは生じないが、フリンジパターンで、同相部分での抑え込みが逆相部分よりも顕著になり、$T_2 \ll \Delta t_p$ の場合には、パルス自身の特性がわかることを説明した。図5－12(d)に示した。グリセリン溶媒中での M.G.では、$T_2 \lesssim \Delta t_p$ に相当するような上部でのフリンジパターンの抑え込みが見られた。一方、(e)のメタノール溶媒中でのM.G.では、その変化が見られなかった。これらの差異は、次のように説明することができる。

一般に、分子の緩和過程の速さは、溶媒の粘性に左右され、粘性の大きいもの程、その速さは遅くなると考えられる。これまでにも、エネルギー緩和時間T_1は、通常10ps ～数ns 領域に入るために、T_1の粘性ηに関する研究は多くなされてきている。そして、T_1とηとは、$T_1 \propto \eta^{1/3}$ の 関係にあることが報告されている[25],[26]。したがって、同じ溶媒中での溶質との相互作用によるT_2に関しても、同様に$T_2 \propto \eta^{1/3}$ なる関係があると考えられる。そこで、グリセリン中でのM.G.のT_2 を、用いたパルス幅0.3ps程度と考えると、エチレングリコール中でのM.G.

のT_2は、$T_2 \propto \eta^{1/3} = 2 \cdot 0.9^{1/3} \sim 0.08_{ps}$、メタノール中でのM.G.の$T_2$は、$T_2 \propto \eta^{1/3} = 0.59^{1/3} \sim 0.03_{ps}$程度となる。これは、図5－12(e)のメタノール溶媒中でのM.G.のフリンジパターンでは、(d)に見られるフリンジパターンの歪が生じていないことからも、用いたパルス幅～0.3_{ps}より短かいことがわかる。この段階では、まだ、T_2に関する充分な情報は得られていないが用いた色素のパラメータ、実験条件等を計算機シミュレーションし、並行して、図5－12に示したようなフリンジパターンを測定することにより、ある程度の位相緩和時間T_2に関する情報が得られることが確認された。

5－3　従来の結果との比較

ここでは、これまでに周波数領域、あるいは、ただ一例であるが時間領域で行われた位相緩和時間T_2の測定結果と本報告の結果との比較検討を行う。

周波数領域での色素の位相緩和時間の測定例

Vahey 等[1]は、モード同期ルビーレーザーを用いて、その入射エネルギーと偏光の関数としてサンプル中での非線形な吸収を測定することによりT_2の値を推定している。彼等は、実験結果とシミュレーションとの比較から、グリセリン溶媒中でのDDI（1, 1′-diethy 1-2, 2′-dicarbocyanine-iodide）のT_2の値として、$T_2 = 0.4 \pm 0.2_{ps}$を得ている。また、Mourou[2]は、モード同期ルビーレーザーの強い光を用い、ホールバーニイング効果を利用して、液相での色素のT_2の測定を行っている。T_2の決定は、実験結果とシミュレーションの結果との一致で行われている。用いた色素は、メタノール溶媒中でのクリプトシアニン色素であり、$T_2 = 0.6 \sim 1_{ps}$の値を得た。Yajima 等[5]は、共鳴レイリー型光混合法、つまり異なる角周波数ω_1, ω_2の2種の入射光を物質にあてると、三次の非線形効果により$\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$, $\omega_4 = 2\omega_2 - \omega_1$の光が発生する。ここで、$\omega_1$, ω_2とも物質の広い吸収帯に共鳴するように選び、ω_3の出力強度を差周波$\omega_1 - \omega_2$の関数として測定するもので、この方法を用いて、エタノール中でのローダミンBのT_2の値として、$T_2 = 0.04ps \pm 20$ %を得ている。Song 等[6]は、Yajima 等とほぼ同様な方法で、マラカイトグリーンの水溶媒中でのT_2を測定し、$T_2 < 0.02_{ps}$を得ている。

時間領域での色素の位相緩和時間の測定例

Yajima 等[13]は、CW色素レーザーからの 0.2_{ps} の光パルスを用いて、フォトン・エコーの方法をもっと拡張した過渡的空間パラメトリック法で、サブピコ秒位相緩和時間の情報を得ることを試みた。試料としては、DODCI のエタノール溶液で、$T_2 < 0.05_{ps}$ の値を得ている。

以上が、これまでに、液相での色素分子を対象にして行われてきた、周波数、時間領域での位相緩和時間 T_2 の測定結果例であるが、本実験結果と同様、T_2 の オーダー的なものしか得られていない。この原因は、このような領域での T_2 の測定は、実験的にむずかしく、また緩和機構のモデルあるいは結果の解釈等に問題を残しているためであると思われる。

5—4 結　　言

サブピコ秒光パルスの応用の一例として、提案した相互にコヒーレントなサブピコ秒光パルスに対する媒質の平均透過率が媒質の位相記憶時間とパルス対間の位相関係に依存することを利用した方法で、液相での有機色素分子の位相緩和時間の直接測定を試みた。これにより得られた結果は次のようにまとめられる。

(1) 提案した方法の測定原理は、計算機シミュレーションによるブロッホ・ベクトルの動きから説明することができた。

(2) パルス幅 Δt_p と T_2 との関係が、$\Delta t_p \gtrsim T_2$ の場合には、フリンジパターン上において、同相部分の抑え込みが顕著になることが、シミュレーションならびに実験結果で確認された。

(3) この方法は、原理的に、T_2 と T_2^* が分離されないために、不均一位相緩和時間を測定することになる。

(4) この方法を用いて、グリセリン溶媒中のマラカイトグリーン色素で $T_2^* \lesssim 0.3_{ps}$、メタノール溶媒中のマラカイトグリーン色素で $T_2^* \ll 0.3_{ps}$ であることが実験より得られた。

本実験では、サンプルの種々のパラメータが変え易いこと、また、これまでにいくつかの測定例があること等から、液相での色素の位相緩和時間の直接測定を試みたが、今後、固体、特に半導体にこの方法を適用し T_2 を測定をすることによって、半導体

レーザーの動作特性、そのモード同期特性、光一電気スイッチ、太陽電池の効率等の解明に役立つものと考えている。

第6章　結　　論

以上が、これまでサブピコ秒光パルスの発生とその応用に関して著者が行ってきた研究をまとめたものである。

この章では、本研究を通じて得られた成果を改めて要約して述べ、今後の課題や問題点を指摘して結論とする。

第2章では、現在、唯一のサブピコ秒光パルス発生光源であると共に、今後、さらに短パルス発生の可能性を秘めたCW色素レーザーの製作を行った。その結果、

(1) CW色素レーザー装置設計上の指針を明らかにすると共に、装置の要となる、ジェット・ストリーム、色素循環系の製作を行い、これらの装置が、短期ならびに長期的な安定度に優れたものであることが示された。

(2) サブピコ秒光パルス発生に適した共振器構成についての検討を行うと共に、発振動作上重要となる要素を実験的に明らかにした。そして、製作したCW色素レーザー装置は、入出力特性、出力の安定性において優れた特性を有することが示された。

第3章では、サブピコ秒光パルス発生法として、提案した内部変調を併用した受動モード同期法、利得変調を併用した受動モード同期法、混合色素による受動モード同期法について、計算機シミュレーションならびに実験を行い、その結果、

(3) 内部変調を併用した受動モード同期法では、レーザー媒質のもつ広い利得バンド幅を有効に利用できることが、シミュレーションならびに実験結果により示された。また、この方法で問題となる共振器内部のプリズムの横分散について検討を行い、0.1_{ps} 程度の光パルス発生が充分可能であることが示された。さらに、この方法は、通常の受動モード同期法に比較して、安定なパルス発生が行えることが実験的に確認された。

(4) 利得変調を併用した受動モード同期法では、通常のシンクロナスモード同期法に比較して、超短光パルス発生の条件が緩和されると共に、受動モード同期法に比較して、広帯域波長可変化、高出力パルスの発生に適していることが示された。

(5) 混合色素による受動モード同期法では、単一色素、例えばRh－6GとDODCIの受動モード同期に比較して、広範囲な波長領域でサブピコ秒光パルスを得るこ

とができた。

第4章では、超短光パルスの強度と位相の相関の同時測定が可能な新しい型の相関器について検討を行い、その結果、

(6) 製作した相関器は、位相成分を測定するのに充分安定であり、また、機械的掃引を採用している点で小形で、かつ、取り扱いが容易であることが示された。

(7) スピーカーの掃引により実時間で強度相関波形がモニターでき、また、PZTの高・低速交互掃引により、超短光パルスの位相と強度相関とを分離しつつ同時に測定でき、かつ、それらの機能を両立させることが可能であり、これらの同時測定の結果から、フーリエ変換極限パルス（TLP）の判定を迅速に行えることが実験的に示された。

(8) この相関器によって測定された超短光パルスの特性をその内部に直線的な周波数変動を含むと仮定することにより説明できることが示された。

第5章では、サブピコ秒光パルスの応用の一例として、提案した方法で、液相での位相緩和時間の直接測定を試み、その結果、

(9) 提案した方法の測定原理は、計算機シミュレーションによるブロッホ・ベクトルの動きから説明できることが示された。

(10) シミュレーションの結果から、パルス幅 Δt_p と位相緩和時間 T_2 の大小関係によって、$\Delta t_p \ll T_2$ の場合には、両側のウィングの減衰から T_2 を推定できること、$\Delta t_p \gtrsim T_2$ の場合には、干渉フリンジの同相部分の抑え込みの程度と対応するシミュレーションの結果から T_2 を推定できること、$\Delta t_p \gg T_2$ の場合には、パルス自身の特性がわかることなどが示された。

(11) この方法を、液相有機色素分子に適用することによって、グリセリン溶媒中のマラカイトグリーン色素で $T_2^* \lesssim 0.3_{ps}$、メタノール溶媒中のマラカイトグリーン色素で $T_2^* \ll 0.3_{ps}$ であることが実験的に示された。

さらに、今後に残された課題として次のことがあげられる。

(1) 提案したサブピコ秒光パルス発生法について、さらに深い検討と、フェムト秒光パルスを達成するための理論的ならびに実験的検討をすること。

(2) 発生した超短光パルス内部の位相特性を実験で確かめると共に、フーリエ変換極限パルスを発生するための条件を検討すること。これは、さらに、超短光パルスの

有効な圧縮に関する知見も与えてくれる。

(3) 提案した位相緩和時間の直接測定法では、原理的に、均一、不均一の位相緩和時間の分離ができないので、これに対して何らかの工夫をする必要がある。さらに、得られた結果の解釈についても、より深い検討と考察が必要である。

謝　　辞

本研究を行うに際し、終始懇切な御指導、御鞭撻を賜った大阪大学産業科学研究所松尾幸人教授に深甚なる感謝の意を表します。又、本研究を遂行する過程において適切なる御助言をもって終始親しく御指導いただいた大阪大学産業科学研究所張吉夫助教授に深甚なる感謝の意を表します。

論文作成にあたり、適切なる御助言、御教示を賜った大阪大学工学部小山次郎教授に深謝の意を表します。

さらに、著者が大阪大学に在学中、御指導と御教示を賜った大阪大学工学部喜田村善一名誉教授、尾崎弘教授、中井順吉教授、塙輝雄教授、裏克己教授、児玉慎三教授、寺田浩詔教授、および大阪大学産業科学研究所中村勝吾教授、角所収教授に深謝の意を表します。

本研究に関して有意義な討論、御助言を頂いた慶応大学理工学部霜田光一教授、東京大学物性研矢島達夫助教授、石田祐三博士、ならびに大阪大学基礎工学部小林哲郎助教授に心から感謝の意を表します。

著者が所属する大阪大学産業科学研究所松尾研究室において本研究の過程で終始親しく御指導、御鞭撻をいただいた現大阪電気通信大学通信工学科張年錫教授、安精治博士に深謝の意を表します。

さらに著者が大阪大学産業科学研究所松尾研究室において本研究の各過程で終始有益なる御助言、御討論をいただいた鳥取大学教授原稔氏ならびに戎谷圭介氏、楠陽氏、梅田徳男氏、花光清氏、林昭博氏、故伊藤寛氏、山本正治氏、南部滋雄氏、山田省二氏、生澤芳昭氏、大家重明氏、横山弘之氏、武田則夫氏、林健一氏、坂本豊和氏、岡本昌士氏、神田昌彦氏、藤原隆氏、村上知広氏、北川勝浩氏に厚く御礼申し上げます。

最後に、本研究を通じて苦労を共にしてくれた、愛する妻尚美に心から感謝の意を表します。

参　考　文　献

第 1 章

(1) A.J.DeMaria, D.A.Stetser and H.Heynau: "Self mode-locking of lasers with saturable absorbers", Appl. Phys. Lett.,8, 7,pp.174-176(1966).

(2) M.Maier, W.Kaiser and J.A.Giordmaine: "Intense light bursts in the stimulated Raman effect", Phys. Rev. Lett.,17,26,pp. 1275-1277(1966).

(3) J.A.Armstrong: "Measurement of picosecond laser pulse width ", Appl. Phys. Lett.,10,1,pp.16-18(1967).

(4) H.P.Weber: "Method for pulsewidth measurement of ultrashort light pulses generated by phase-locked lasers using non-linear optics", J. Appl. Phys.,38,5,pp.2231-2234(1967).

(5) J.A.Giordmaine, P.H.Rentzepis, S.L.Shapiro and K.W.Wecht: " Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses", 11,7,pp.216-218(1967).

(6) W.Schmidt and F.P.Schäfer: "Self-mode-locking of dye-lasers with saturable absorbers", Phys. Lett. 26A,11,pp.558-560 (1968).

(7) O.G.Peterson, S.A.Tuccio and B.B.Snavely: "CW operation of an organic dye solution laser", Appl. Phys. Lett.,17,6,pp. 245-247(1970).

(8) A.Dienes, E.P.Ippen and C.V.Shank: "A mode-locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,19,8,pp.258-260(1971).

(9) E.P.Ippen, C.V.Shank and A.Dienes: "Passive mode-locking of the cw dye laser", Appl. Phys. Lett., 21,8,pp.348-350(1972).

(10) C.V.Shank and E.P.Ippen: "Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,24,8, pp.373-375(1974).

(11) E.P.Ippen and C.V.Shank: "Dynamic spectroscopy and subpicosecond pulse compression", Appl. Phys. Lett.,27,9,pp. 488-490(1975).

(12) I.S.Ruddock and D.J.Bradley: "Bandwidth-limited subpicosecond pulse generation in mode-locked cw dye lasers", Appl. Phys. Lett.,29,5,pp.296-297(1976).

(13) J.-C.Diels, E.Van Stryland and G.Benedict: "Generation and measurement of 200 femtosecond optical pulses", Opt. Commun.,25,1,pp.93-96(1978).

(14) J.-C.Diels, J.Menders and H.Sallaba: "Generation of coherent pulses of 60 optical cycles through synchronization of the relaxation oscillations of a mode-locked dye laser", Picosecond Phenomena II,eds. C.V.Shank et al.,pp. 41-45,Springer-Verlag(1980).

(15) R.L.Fork, B.I.Greene and C.V.Shank: "Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking", Appl. Phys. Lett.,38,9,pp.671-672(1981).

(16) R.K.Jain and J.P.Heritage: "Generation of synchronized cw traines of picosecond pulses at two independently tunable wavelengths", Appl. Phys. Lett.,32,1,pp.41-44(1978).

(17) J.P.Heritage and R.K.Jain: "Subpicosecond pulses from a tunable cw mode-locked dye laser", Appl. Phys. Lett.,32, 15,pp.101-103(1978).

(18) D.J.Bradley: "Method of generation", Ultrashort Light Pulses,ed. S.L.Shapiro,pp.17-18,Springer-Verlag(1977).

(19) J.-C.Diels, E.W.Van Stryland and D.Gold: "Investigation of the parameters affecting subpicosecond pulse durations in passively mode locked dye lasers", Picosecond Phenomena, eds. R.M.Hochstrasser et al.,pp.41-45,Springer-Verlag (1978).

(20) T.Yajima, Y.Ishida and Y.Taira: "Investigation of subpicosecond dephasing processes by transient spatial parametric

effect in resonant media", Picosecond Phenomena II,eds. C. V.Shank et al.,pp.190-194,Springer-Verlag(1980).

第 2 章

(1) Catalogue of Lambda Physik (D-3400 Gottingen, Postfach 204, Germany).

(2) K.Kato: "Broadly tunable dye-laser emission to 12850 Å", Appl. Phys. Lett.,33,6,pp.509-510(1978).

(3) 前田三男：〝色素レーザー用有機化合物総覧Ⅰ〞，レーザー研究，8，4，pp.694−712(1980).

(4) B.B.Snavely: "Continuous-wave dye lasers", Dye Lasers,ed. F.P.Schäfer,pp.86-120,Springer-Verlag(1973).

(5) O.Teschke, A.Dienes and G.Holtom: "Measurement of triplet lifetime in a jet stream cw dye laser", Opt. Commun.,13,3, pp.318-320(1975).

(6) O.Tescheke and A.Dienes: "Solvent effects on the triplet state population in jet stream cw dye lasers", Opt. Commun. ,9,2,pp.128-131(1973).

(7) K.H.Drexhage: "Structure and properties of laser dyes", Dye Lasers,ed. F.P.Schafer,pp.144-193,Springer-Verlag(1973).

(8) C.V.Shank, A.Dienes, A.M.Trozzolo and J.A.Myer: "Near uv to yellow tunable laser emission from an organic dye", Appl. Phys. Lett.,16,10,pp.405-407(1970).

(9) P.K.Runge and R.Rosenberg: "Unconfined flowing-dye films for cw dye lasers", IEEE J. Quantum Electron.,QE-8,12,pp. 910-911(1972).

(10) S.Leutwyler, E.Schumacher and L.Wöste: "Extending the solvent palette for cw jet stream dye lasers", Opt. Commun. ,19,2,pp.197-200(1976).

(11) 黒堀，張，松尾：〝CW色素レーザー用ジェット・ノズルの作り方〞，レーザー研究，5，1，pp・34−38（1977）.

(12) 黒堀：〝CW色素レーザーのモード同期に関する研究〞，修士論文（1977）.

(13) B.Wellegehausen, H.Welling and R.Beigang: "A narrowband jet stream dye laser", Appl. Phys.,3,pp.387-391(1974).

(14) S.A.Tuccio and F.C.Strome,Jr.: "Design and operation of a tunable continuous dye laser", Appl. Optics,11,1,pp.64-73(1972).

(15) H.W.Kogelnik, E.P.Ippen, A.Dienes and C.V.Shank: " Astigmatically compensated cavities for cw dye lasers", IEEE J. Quantum Electron.,QE-8,3,pp.373-379(1972).

(16) W.Hüffer, R.Schieder and U.Brrinkmann: "Astigmatically compensated cw dye laser resonators using lenses", Appl. Phys.,15,pp.157-161(1978).

(17) C.V.Shank and E.P.Ippen: "Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,24,8, pp.373-375(1974).

(18) R.L.Fork, B.I.Greene and C.V.Shank: " Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking", Appl. Phys.Lett.,38,9,pp.671-672(1981).

(19) J.-C.Diels, J.Menders and H.Sallaba: "Generation of coherent pulses of 60 optical cycles through synchronization of the relaxation oscillations of a mode-locked dye laser", Picosecond Phenomena II,eds. C.V.Shank et al., pp.41-45,Springer-Verlag(1980).

(20) Y.Ishida and T.Yajima: private communications.

(21) E.P.Ipeen and C.V.Shank: "Dynamic spectroscopy and subpicosecond pulse compression", Appl. Phys. Lett.,27,9,pp.488-490(1975).

(22) I.S.Ruddock and D.J.Bradley: "Bandwidth-limited subpicosecond pulse generation in mode locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,29,5,pp.296-297(1976).

(23) J.A.Arnaud, W.M.Hubbard, G.D.Mandeville, B.de la Clavière, E.A.Franke and J.M.Franke: "Technique for fast measurement

of Gaussian laser beam parameters", Appl. Optics,10,12,pp. 2775-2776(1971).

(24) Y.Suzaki and A.Tachibana: "Measurement of the Gaussian laser beam divergence", Appl. Optics,10,12,pp.2775-2776 (1977).

(25) 黒堀，張，松尾：〝サブピコ秒レーザー〟，理研レーザー科学研究グループ，ピコ秒レーザーとその分光への応用（昭55−12）.

(26) 黒堀，張，松尾：〝サブピコ秒光パルス測定のための位相項測定可能な自己相関干渉計の試作〟，昭和56年春季応物講演会，31p−K−4(昭56−03).

第 3 章

(1) C.V.Shank and E.P.Ippen: "Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,24,8, pp.373-375(1974).

(2) R.L.Fork, B.I.Greene and C.V.Shank: "Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking", Appl. Phys. Lett.,38,9,pp.671-672(1981).

(3) T.Kurobori, Y.Cho and Y.Matsuo: "Ultrashort pulses from a cw dye laser using passive-active mode-locking technique", Opt. Commun.,24,1,pp.41-43(1978).

(4) S.R.Rotman, C.B.Roxlo, D.Bebelaar, T.K.Yee and M.M.Salour: "Pulse-width stabilization of a synchronously pumped dye laser", Picosecond Phenomena II,eds. C.V.Shank et al.,pp. 50-53,Springer-Verlag(1980).

(5) E.I.Moses, J.J.Turner and C.L.Tang: "Mode locking of laser oscillators by injection locking", Appl. Phys. Lett.,28,5, pp.258-260(1976).

(6) J.deVries, D.Bebelaar and J.Langelaar: "Generation of 530-670 nm and 265-335 nm picosecond pulses in a cw dye laser by mode-locked synchronous pumping", Opt. Commun.,18,1,pp. 24-26(1976).

(7) E.P.Ippen and C.V.Shank: "Pulsewidth measurements", Ultra-

short Light Pulses,ed. S.L.Shapiro,pp.83-92,Springer-Verlag (1977).

(8) 張，黒堀：〝ピコ秒パルス光の測定〞，応用物理，49，1，pp.40(1980).

(9) 黒堀，張，松尾：〝CW色素レーザーからのサブピコ秒光パルスの発生〞，輻射科学研究会資料(昭54－07).

(10) 黒堀，張，松尾：〞強制変調を併用した受動モード同期CW色素レーザーからの超短光パルス(計算機解析)〞，昭51年信学光・電波全大，264(昭51－11).

(11) 黒堀，張，松尾：〞強制変調を併用した受動モード同期CW色素レーザーからの超短光パルス(実験Ⅰ)〞，昭52年春季応物講演会，29a－C－8(昭52－03).

(12) 黒堀，張，松尾：〞強制変調を併用した受動モード同期CW色素レーザーからの超短光パルス(実験Ⅱ)〞，昭53年信学光・電波全大，757(昭53－03).

(13) 黒堀，張，松尾：〞強制変調を併用した受動モード同期CW色素レーザーからの超短光パルス(実験Ⅲ)〞，昭53年秋季応物講演会，5a－P－7(昭53－11).

(14) 南部，望月，笹谷，張，松尾：〞フラッシュランプ励起色素レーザーのモード同期〞，信学会・光量子エレクトロニクス研究会資料，OQE75－39，pp.79－88(1975).

(15) 例えば，R.H.Pantell and H.E.Puthoff: Fundamentals of Quantum Electronics, John Wiley & Sons.(1969).

(16) 張，中川，松尾：〞レーザーのモードロッキングの時間領域での解析－1.計算機解析の結果－〞，信学会・光量子エレクトロニクス研究会資料，OQE73－16，pp.1－13(1973).

(17) 張，松尾：〞レーザーのモードロッキング〞，レーザー研究，2，1，pp.11－23(1974).

(18) M.R.Topp and G.C.Orner: "Group dispersion effects in picosecond spectroscopy", Opt. Commun.,13,3,pp.276-281(1975).

(19) F.A.Jenkins and H.E.White: Fundamentals of Optics, 4th edition, McGrow Hill Book Co.,New York,pp.476(1976).

(20) 黒堀，張，松尾：〞サブピコ秒光パルスの発生とその特性〞，特定研究レーザー分光による励起状態の科学(昭52－12)研究報告書(昭53－03).

(21) C.K.Chan and S.O.Sari: "Tunable dye laser pulse converter for production of picosecond pulses", Appl. Phys. Lett.,25, 7,pp.403-405(1974).

(22) C.K.Chan, S.O.Sari and K.E.Foster: "Pulse properties of the tunable dye laser pulse converter", J. Appl. Phys.,47,3,pp. 1139-1141(1976).

(23) J.P.Ryan, L.S.Goldberg and D.J.Bradley: "Comparison of synchronous pumping and passive mode-locking of cw dye lasers for the generation of picosecond and subpicosecond light pulses", Opt. Commun.,27,1,pp.127-132(1978).

(24) Y.Ishida, T.Yajima and N.Naganuma: "Generation of broadly tunable subpicosecond light pulses from a synchronously and passively mode-locked cw dye laser", Jpn. J. Appl. Phys., 19,12,pp.L717-L720(1980).

(25) 石田，矢島："色素レーザーによるサブピコ秒光パルスの発生"，日本物理学会誌，36，7，pp.535−542(1981).

(26) 黒堀，張，松尾："モード同期色素レーザーからの超短光パルスの特性"，信学会・光量子エレクトロニクス研究会資料，OQE 79−36，pp・1−6（1979）.

(27) 黒堀，張，松尾："混合色素CWモード同期レーザーによるサブピコ秒パルスの発生"，昭54年秋季応物講演会，30a−C−6（昭54−09）.

(28) D.Von Der Linde: "Mode-locked lasers and ultrashort light pulses", Appl. Phys.,2,pp.281-296(1973).

(29) I.S.Ruddock and D.J.Bradley: "Bandwidth-limited subpicosecond pulse generation in mode locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,29,5,pp.296-297(1976).

(30) Z.A.Yasa, A.Dienes and J.R.Whinnery: "Subpicosecond pulses from a cw double mode-locked dye laser", Appl. Phys. Lett., 30,1,pp.24-26(1977).

(31) J.-C.Diels, E.Van Stryland and G.Benedict: "Generation and measurement of 200 femtosecond optical pulses", Opt. Commun.,25,1,pp.93-96(1978).

(32) G.H.C.New: "Pulse evolution in mode-locked quasi-continuous lasers", IEEE J. Quantum Electron.,QE-10,2,pp.115-124 (1974).

第 4 章

(1) D.J.Bradley: "Methods of generation", Ultrashort Light

Pulses,ed. S.L.Shapiro,pp.17-81,Springer-Verlag(1977).

(2) E.P.Ippen and C.V.Shank: "Pulsewidth measurements", Ultrashort Light Pulses,ed. S.L.Shapiro,pp.83-92,Springer-Verlag(1977).

(3) 張，黒堀：″ ピコ秒パルス光の測定″ ，応用物理，49，1，pp.40(1980).

(4) J.-C.Diels, E.W.Van Stryland and G.Benedict: "Generation and measurement of 200 femtosecond optical pulses", Opt. Commun.,25,1,pp.93-96(1978).

(5) J.-C.Diels, E.W.Van Stryland and D.Gold: "Investigation of the parameters affecting subpicosecond pulse durations in passively mode locked dye lasers", Picosecond Phenomena,eds. R.M.Hochstrasser et al.,pp.117-120,Springer-Verlag(1978).

(6) J.-C.Diels, J.Menders and H.Sallaba: "Generation of coherent pulses of 60 optical cycles through synchronization of the relaxation oscillations of a mode-locked dye laser", Picosecond Phenomena II,eds. C.V.Shank et al.,pp.41-45,Springer-Verlag(1980).

(7) E.P.Ippen and C.V.Shank: "Dynamic spectroscopy and subpicosecond pulse compression", Appl. Phys. Lett.,27,9,pp.488-490 (1975).

(8) H.A.Haus: "Theory of mode locking with a slow saturable absorber", IEEE J. Quantum Electron.,QE-11,9,pp.736-746 (1975).

(9) I.S.Ruddock and D.J.Bradley: "Bandwidth-limited subpicosecond pulse generation in mode locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,29,5,pp.296-297(1976).

(10) 神田，黒堀，張，松尾：″ 周波数変動を含む超短光パルスの特性″ ，昭56年秋季応物講演会，9p－L－10(昭56－10).

(11) 黒堀，張，神田，松尾：″ 周波数変動を含む超短光パルス測定のための強度ならびに位相相関器″ ，信学論(C)，投稿中.

(12) Z.A.Yasa, A.Dienes and J.R.Whinnery: "Subpicosecond pulses from a cw double mode-locked dye laser", Appl. Phys. Lett.,

30,1,pp.24-26(1977).

(13) A.Dienes, E.P.Ippen and C.V.Shank: "A mode-locked cw dye laser", Appl. Phys. Lett.,19,8,pp.258-260(1971).

(14) 黒堀，神田，張，松尾：″光パルスの強度および位相の自己相関波形測定用干渉装置″，昭56年秋季応物講演会，9p－L－9（昭56－10）.

(15) R.L.Fork and F.A.Beisser: "Real-time intensity autocorrelation interferometer", Appl. Optics,17,22,pp.3534-3535 (1978).

(16) K.L.Sala, G.A.Kenney-Wallace and G.E.Hall: "CW autocorrelation measurements of picosecond laser pulses", IEEE J. Quantum Electron.,QE-16,9,pp..990-996(1980).

(17) Y.Ishida, T.Yajima and Y.Tanaka: "Rapid-scan autocorrelator for monitoring cw mode-locked dye laser pulses", Jap. J. Appl. Phys.,19,6,pp.L289-L292(1981).

(18) Z.A.Yasa and N.N.Amer: "A rapid-scanning autocorrelation scheme for continuous monitoring of picosecond laser pulses ", Opt. Commun.,36,5,pp.406-408(1981).

(19) H.Harde and H.Burggraf: "Rapid scanning autocorrelator for measurements of picosecond laser pulses", Opt. Commun.,38, 3,pp.211-215(1981).

(20) T.Kurobori, Y.Cho and Y.Matsuo: "Ultrashort pulses from a cw dye laser using passive-active mode locking technique", Opt. Commun.,24,1,pp.41-43(1978).

(21) 黒堀，張，松尾：″サブピコ秒光パルス測定のための位相項測定可能な自己相関干渉計の試作″，昭56年春季応物講演会，31p－K－4（昭56－03）.

(22) 黒堀，張，松尾：″モード同期CW色素レーザーからの超短光パルスの特性″，信学技報，OQE79－36，pp.1－6（1979）.

(23) T.Kurobori, Y.Cho and Y.Matsuo: "An intensity/phase autocorrelator for the use of ultrashort optical pulse measurements", Opt. Commun., in press(1981).

第 5 章

(1) D.W.Vahey and A.Yariv: "Effects of spectral cross relaxation and collisional dephasing on the absorption of light by organic-dye solutions", Phys. Rev. A,10,5,pp.1578-1590 (1974).

(2) G.Mourou: "Spectral hole burning in dye solusions", IEEE J. Quantum Electron.,QE-11,1,pp.1-8(1975).

(3) F.Keilmann: "Infrared saturation spectroscopy in P-type germanium", IEEE J. Quantum Electron.,QE-12,10,pp.592-597 (1976).

(4) T.Kushida and E.Takushi: "Determination of homogeneous spectral widths by fluorescence line narrowing in $Ca(PO_3)_2$: Eu^{3+}", Phys. Rev. B,12,3,pp.824-827(1975).

(5) T.Yajima and H.Souma: "Study of ultra-fast relaxation processes by resonant Rayleigh-type optical mixing 1.Theory ", Phys. Rev. A17,1,pp.309-323(1978); T.Yajima, H.Souma and Y.Ishida: "Study of ultra-fast relaxation processes by resonant Rayleigh-type optical mixing 2.Experiment on dye solutions", Phys. Rev. A17,1,pp.324-334(1978).

(6) J.J.Song, J.H.Lee and M.D.Levenson: "Picosecond relaxation measurements by polarization spectroscopy in condensed phases", Phys. Rev. A17,4,pp.1439-1447(1978).

(7) P.F.Liao, N.P.Economou and R.R.Freeman: "Two-photon transient measurements of Doppler-free linewidths with broadband excitation", Phys. Rev. Lett.,39,23,pp.1473-1476(1977).

(8) W.H.Hesselink and D.A.Wiersma: "Picosecond photon echoes detected by optical mixing", Chem. Phys. Lett.,56,2,pp.227-230(1978).

(9) I.D.Abella, N.A.Kurnit and S.R.Hartmann: "Photon echoes",

Phys. Rev.,141,1,pp.391-406(1966).

(10) M.Matsuoka, H.Nakatsuka and M.Fujita: "Picosecond backward echo in sodium vapor-relaxation and quantum beat modulation ", Picosecond Phenomena II,eds.C.V.Shank et al.,pp.357-361, Springer-Verlag(1980).

(11) P.Hu, S.Chu and H.M.Gibbs: "Observation of picosecond photon echoes in GaP:N", Picosecond Phenomena II,eds. C.V. Shank et al.,pp.308-309,Springer-Verlag(1980).

(12) T.Yajima, Y.Taira: "Spectral optical parametric coupling of picosecond light pulses and transverse relaxation effect in resonant media", J. Phys. Soc. Jpn.,47,5,pp.1620-1626 (1979).

(13) T.Yajima, Y.Ishida and Y.Taira: "Investigation of subpicosecond dephasing processes by transient spatial parametric effect in resonant media", Picosecond Phenomena II,eds. C. V.Shank et al.,pp.190-194,Springer-Verlag(1980).

(14) Y.Cho, T.Kurobori and Y.Matsuo: "Direct molecular dephasing time measurement using subpicosecond coherent double pulses ", 11th International Quantum Electronics Conference,Boston Mass.,June 23-26,G6(1980).

(15) T.Kurobori, Y.Cho and Y.Matsuo: "Direct molecular dephasing time measurement using subpicosecond coherent double pulses ", Opt. Commun.,submitted for publication.

(16) M.M.Salour: "Optical Ramsey fringes in two-photon spectroscopy", Appl. Phys.,15,pp.119-131(1978).

(17) H.P.Grieneisen, J.Goldhar, N.A.Kurnit and A.Javan: "Observation of the transparency of a resonant medium to zero-degree optical pulses", Appl. Phys. Lett.,21,11,pp.559-562 (1972).

(18) J.C.Diels and E.L.Hahn: "Phase-modulation propagation effects in ruby", Phys. Rev. A10,6,pp.2501-2509(1974).

(19) 張，黒堀，松尾：" 複数個のパルスの２準位系中のコヒーレント伝搬 "，昭55年春季応物講演会，１ａ－Ｋ－４（昭55－04）.

(20) G.L.Lamb,Jr.: "Analytical descriptions of ultrashort optical pulse propagation in a resonant medium", Rev. Mod. Phys.,43,2,pp.99-124(1971).

(21) M.D.Crisp: "Propagation of small area pulses of coherent light through a resonant medium", Phys. Rev. A1,6,pp.1604-1611(1970).

(22) 黒堀，張，松尾：" サブピコ秒光パルスの発生とそれによる励起状態位相緩和時間の直接測定 "，特定研究レーザー分光による励起状態の科学（昭53－12）研究報告書（昭54－03）.

(23) 黒堀，張，松尾：" サブピコ秒光パルスの発生とそれによる励起状態位相緩和時間の直接測定 "，特定研究レーザー分光による励起状態の科学（昭55－01）研究報告書（昭55－03）.

(24) 黒堀，張，松尾：" サブピコ秒ダブルパルスを用いた液体有機色素分子の位相緩和時間の直接測定 "，理研レーザー科学研究グループ，ピコ秒レーザーとその分光への応用(昭55－12).

(25) E.P.Ippen, C.V.Shank and A.Bergman: "Picosecond recovery dynamics of malachite green", Chem. Phys. Lett.,38,3,pp.611-614(1976).

(26) J.R.Taylor, M.C.Adams and W.Sibbet: "Investigation of viscosity dependent fluorescence lifetime using a synchronously operated picosecond streak camera", Appl. Phys.,21, pp.13-17(1980).

関 連 発 表 論 文

1) Papers

(1) T.Kurobori, Y.Cho and Y.Matsuo:
"Ultrashort pulses from a cw dye laser using passive-active mode locking technique",
Opt. Commun.,24,1,pp.41-43(1978).

(2) T.Kurobori, Y.Cho and Y.Matsuo:
"An intensity/phase autocorrelator for the use of ultrashort optical pulse measurements",
Opt. Commun., in press (1981).

(3) T.Kurobori, Y.Cho and Y.Matsuo:
"Direct molecular dephasing time measurement using subpicosecond coherent double pulses",
Opt. Commun., submitted for publication.

(4) 黒堀，張，神田，松尾：" 周波数変動を含む超短光パルス測定のための強度ならびに位相相関器 "，信学会論文誌(C)，投稿中.

2) 国 際 会 議

(1) Y.Cho, T.Kurobori and Y.Matsuo:
"Direct molecular dephasing time measurement using low-intensity level cw coherent double pulses",
11th International Quantum Electronics Conference, Boston, Mass., June 23-26, G6(1980).

3) 研　究　会

(1) 黒堀，張，松尾：″ モード同期レーザーからの超短光パルスの特性″ ，信学会・光量子エレクトロニクス研究会資料，OQE79−36，pp.1 −6（1979）.

(2) 黒堀，張，松尾：″ CW色素レーザーからのサブピコ秒光パルスの発生″，輻射科学研究会資料（昭54−07）.

(3) 黒堀，張，松尾：″ サブピコ秒光パルスの発生とその特性″，特定研究レーザー分光による励起状態の科学（昭52−12）研究報告書（昭53−03）.

(4) 黒堀，張，松尾：″ サブピコ秒光パルスの発生とそれによる励起状態位相緩和時間の直接測定″，特定研究レーザー分光による励起状態の科学（昭53−12）研究報告書（昭54−03）.

(5) 黒堀，張，松尾：″ サブピコ秒光パルスの発生とそれによる励起状態位相緩和時間の直接測定″，特定研究レーザー分光による励起状態の科学（昭55−01）研究報告書（昭55−03）.

(6) 黒堀，張，松尾：″ サブピコ秒レーザー″，理研レーザー科学研究グループ ピコ秒レーザーとその分光への応用（昭55−12）.

(7) 黒堀，張，松尾：″ サブピコ秒ダブルパルスを用いた液体有機色素分子の位相緩和時間の直接測定″，同上（昭55−12）.

4) 解 説 記 事

(1) 黒堀，張，松尾：″ CW色素レーザー用ジェットノズルの作り方″ レーザー研究，5 ，pp.34−38（1977）.

(2) 張，黒堀：″ ピコ秒パルス光の測定″，応用物理，49，pp.40（1980）.

5) 学 会 報 告

(1) 黒堀，張，松尾：″フラッシュランプ励起ローダミン６Ｇレーザーのモード同期特性″，昭51年秋季応物講演会，2a－R－2（昭51－10）

(2) 黒堀，張，松尾：″強制変調を併用した受動モード同期ＣＷ色素レーザーからの超短光パルス（計算機解析）″，昭51年信学光・電波全大，264（昭51－11）

(3) 黒堀，張，松尾：″強制変調を併用した受動モード同期ＣＷ色素レーザーからの超短光パルス（実験Ⅰ）″，昭52年春季応物講演会，29a－C－8（昭52－03）．

(4) 黒堀，張，松尾：″強制変調を併用した受動モード同期ＣＷ色素レーザーからの超短光パルス（実験Ⅱ）″，昭53年信学光・電波全大，757（昭53－03）．

(5) 黒堀，張，松尾：″強制変調を併用した受動モード同期ＣＷ色素レーザーからの超短光パルス（実験Ⅲ）″，昭53年秋季応物講演会，5a－P－7（昭53－11）

(6) 黒堀，張，松尾：″混合色素ＣＷモード同期レーザーによるサブピコ秒パルスの発生″，昭54年秋季応物講演会，30a－C－6（昭54－09）．

(7) 張，黒堀，松尾：″複数個のパルスの２準位系中のコヒーレント伝搬″．昭和年春季応物講演会，1a－K－4（昭55－04）．

(8) 黒堀，張，松尾：″サブピコ秒光パルス測定のための位相項測定可能な自己相関干渉計の試作″，昭56年春季応物講演会，31p－K－4（昭56－03）．

(9) 黒堀，神田，張，松尾：″光パルスの強度および位相の自己相関波形測定用干渉装置″，昭56年秋季応物講演会，9p－L－9（昭56－10）．

(10) 神田，黒堀，張，松尾：″周波数変動を含む超短光パルスの特性″，昭56年秋季応物講演会，9p－L－10（昭56－10）．