Osaka University Knowledge Archive

Title	超短パルスKrFレーザーの高出力化
Author(s)	西岡, 一
Citation	大阪大学, 1993, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3075145
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

超短パルスＫｒＦレーザーの

高出力化

平成５年９月

西岡　一

内容梗概

本論文は、筆者が超短パルスＫｒＦレーザーの高出力化を目的として１９８８年から１９９１年の４年間に渡って行った研究成果をまとめたものである。

ＫｒＦレーザーは広い利得帯域と高い効率を持ち、３０ｆｓにおよぶ超短パルス紫外光を増幅できる。しかし、レーザー上準位の寿命が短いため、ＡＳＥを発生して照射実験の妨げとなる。また、単一パルスによる引き出し効率が制限される。加えて、紫外域では光学材料の分散が大きく、レーザー装置内部の光学素子によってパルス広がりを生ずる。さらに、多光子吸収等の非線形吸収が顕著であり、光学損傷が起こり易い問題がある。

本研究は、超短パルスＫｒＦレーザーを実用化する上で必要不可欠な要素技術の開発を目的として行った。初めに、可飽和吸収体を開発し、ＡＳＥの抑制を行った。続いて、それを用いたパルス圧縮法を提案し、パルス広がりを抑えた増幅システムを構築した。次に、過渡誘導ラマン散乱を用いたパルス圧縮法を開発し、引き出し効率を改善した。加えて、光音響法を用いた高感度パルス幅測定法を開発た。さらに、光音響法、光電流法を用いて、光学素子内部の非線形吸収を観測し、レーザー損傷機構を明かにした。

本論文は９章から構成される。

第１章は緒論であり、研究の背景と研究の目的について述べる。

第２章では、ＫｒＦエキシマや紫外レーザー光の性質が超短パルス増幅システムに与える制限要素を明かにし、本研究に至った動機及び、研究の位置づけを示した。

第３章では、紫外可飽和色素の基礎特性を測定し、ＡＳＥの抑制、パルス成形への応用例を示した。まず、可飽和吸収体が備えるべき条件を明かにした。次に、線形３環芳香属色素（アクリジン）の飽和特性・溶媒効果・寿命を測定し、その基礎特性を明らかにした。さらに、アクリジンを短パルスＫｒＦレーザーシステムに適用し、増幅器列中におけるＡＳＥの成長を抑制できることを実証した。

第４章では、２重可飽和吸収体を用いたフェムト秒パルス発生実験について述べる。飽和速度の異なる２つの可飽和吸収体を用いた高速波形成形法を提案した。さらに、この２重可飽和吸収体を色素レーザー、ＫｒＦレーザーに導入して、フェム

ト秒パルスを発生させた。

第５章では、過渡領域における後方ラマンパルス圧縮法について述べる。初めに、１次ストークス光増幅を定常状態に保ちつつ、２次ストークス光発生のみを過渡状態にして抑制する新しい方法を提案した。次に、シミュレーションコードを用いて圧縮器の最適動作条件を明かにした。さらに、実験的に本圧縮率のスケーリング則を検証し、１５０倍に及ぶ圧縮率を得た。

第６章では、光音響信号を用いた紫外シングルショット自己相関計の開発について述べる。光音響検出器の非線形応答、感度、空間分解能を測定し、多光子蛍光法に比べ２桁高い感度が得られることを示した。

第７章では、紫外光学素子の損傷機構について述べる。光音響法を用いて、光学薄膜内部の多光子吸収、レーザー損傷しきい値を測定し、光学材料と損傷機構の関係を示した。あわせて、光学薄膜内部の光電流を観測し、電子雪崩損傷における電子増倍の実効利得と損傷しきい値の関係を明かにした。

第８章は結論であり、以上の研究で得られた結果をまとめ、本論文の総括とした。

目　次

第１章　緒論 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1

１．１　研究の背景 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1

１．２　超短パルスＫｒＦレーザー ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2

１．３　研究の目的と成果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3

第２章　ＫｒＦレーザーとその短パルス増幅における問題点 ・・ 6

２．１　ＫｒＦエキシマの特徴 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6

２．１－１　利得帯域と最短パルス幅 ・・・・・・・・・・・・ 6

２．１－２　エキシマ生成時間とモード同期法の限界 ・・・ 9

２．１－３　エネルギー蓄積時間と短パルス引き出し効率 ・・ 11

２．１－４　利得・吸収係数 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 14

２．２　増幅システム中におけるＡＳＥの成長 ・・・・・・・・・・・・ 16

２．２－１　短パルス光増幅特性 ・・・・・・・・・・・・・・・ 16

２．２－２　ＡＳＥ増幅特性 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 18

２．２－３　レーザー光とＡＳＥの分離 ・・・・・・・・・・・ 20

２．２－４　可飽和吸収体と残留吸収 ・・・・・・・・・・・・ 21

２．３　自己位相変調と群速度分散によるパルス広がり ・・・・・・・ 22

２．３－１　自己位相変調のしきい値 ・・・・・・・・・・・・ 22

２．３－２　群速度分散による超短パルス増幅の限界 ・・・ 24

２．３－３　可飽和色素と飽和増幅を用いたパルス圧縮法 ・ 25

２．４　外部パルス圧縮とその限界 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 26

２．４－１　パルススタッキング法 ・・・・・・・・・・・・・ 27

２．４－２　ラマンビーム収束法 ・・・・・・・・・・・・・・・ 28

２．４－３　後方誘導散乱 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 29

２．５　紫外超短パルス光の測定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 29

２．６　紫外光学素子の吸収機構とレーザー損傷 ・・・・・・・・・・・ 31

２．６－１　紫外光学薄膜とその損傷機構 ・・・・・・・・・ 31

２．６－２　吸収の評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 32

２．７　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 34

第３章　ＫｒＦレーザー用可飽和吸収体の開発 ・・・・・・・・・ 37

３．１　ＫｒＦレーザー用可飽和吸収体の条件 ・・・・・・・・・・・ 37
３．１－１　吸収断面積 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 37
３．１－２　残留吸収 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 39
３．１－３　吸収媒質の選択 ・・・・・・・・・・・・・・・・ 42
３．２　可飽和色素の特性測定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 45
３．２－１　吸収スペクトルと吸収断面積 ・・・・・・・・・ 45
３．２－２　飽和フルーエンスと残留吸収 ・・・・・・・・・ 48
３．２－３　吸収回復時間 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 53
３．２－４　色素の劣化試験 ・・・・・・・・・・・・・・・・ 58
３．２－５　まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 60
３．３　ピコ秒ＫｒＦレーザーシステムのＡＳＥ抑制 ・・・・・・・・ 62
３．３－１　ピコ秒ＫｒＦレーザーシステム ・・・・・・・・ 62
３．３－２　可飽和色素を用いたＡＳＥの制御 ・・・・・・・ 64
３．３－３　ナノ秒レーザーの自己短パルス化への応用 ・・ 66
３．３－４　まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 68
３．４　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 69

第４章　２重可飽和吸収体と飽和増幅を用いた内部パルス圧縮法 71

４．１　可飽和吸収体と飽和増幅を用いたレーザーパルス圧縮と問題点 71
４．１－１　入力パルス波形と圧縮率 ・・・・・・・・・・・ 71
４．１－２　可飽和吸収体を用いた入力パルスの成形 ・・・ 74
４．１－３　飽和点と飽和速度 ・・・・・・・・・・・・・・・ 75
４．２　２重可飽和吸収体を用いたパルス成形法の提案 ・・・・・ 76
４．３　色素レーザー、ＫｒＦレーザーにおけるパルス圧縮実験 ・・・ 79
４．３－１　レーザーシステムの構成 ・・・・・・・・・・・ 79
４．３－２　圧縮効果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 84
[1] 色素レーザー出力 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 84
[2] ＫｒＦレーザー出力 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 85
４．４　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 89

第５章　高圧縮率後方ラマンパルス圧縮法 ・・・・・・・・・・・・ 91

５．１　過渡ラマンパルス圧縮法の提案とその理論的解析 ・・・・・ 91
５．１－１　定常法（従来法）の原理と圧縮率の制限要素 ・ 91
５．１－２　過渡後方ラマン圧縮法の提案 ・・・・・・・・・ 99
５．１－３　圧縮限界の定量評価 ・・・・・・・・・・・・ 107
５．１－４　ラマン媒質の選択 ・・・・・・・・・・・・・・ 111
５．１－５　まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 115
５．２　シミュレーションコードを用いた解析 ・・・・・・・・・・ 116
５．２－１　シミュレーションコード ・・・・・・・・・・ 116
５．２－２　解析解の検証 ・・・・・・・・・・・・・・・・ 120
[1]　１次ストークス光の増幅特性 ・・・・・・・・・・ 120
[2]　２次ストークス光の発生しきい値 ・・・・・・・・ 124
５．２－３　圧縮率と変換効率 ・・・・・・・・・・・・・・ 125
[1]　入力パルス幅と圧縮率 ・・・・・・・・・・・・・・ 125
[2]　入力光強度、メタンガス圧力依存性 ・・・・・・ 126
５．２－４　まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 129
５．３　ＫｒＦレーザーの後方過渡ラマン圧縮実験 ・・・・・・・ 130
５．３－１　ＫｒＦレーザー励起ラマン増幅システム ・・ 130
５．３－２　パルス圧縮実験 ・・・・・・・・・・・・・・・ 133
[1]　後方ラマン利得帯域幅の励起光線幅依存性 ・・・ 133
[2]　圧縮率と変換効率 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 135
[3]　２次ストークス光しきい値利得依存性 ・・・・・ 141
[4]　圧縮限界 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 144
５．３－３　まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 146
５．４　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 147

第６章　光音響法を用いたシングルショット自己相関計の開発 150

６．１　シングルショット自己相関計の原理 ・・・・・・・・・・ 150
６．１－１　光音響法 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 150
６．１－２　パルス幅の測定限界 ・・・・・・・・・・・・ 151
６．１－３　２次の自己相関法 ・・・・・・・・・・・・・ 152

６．２　実験装置 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 153
６．２－１　自己相関計の構成 ・・・・・・・・・・・・・・ 153
６．２－２　光音響検出器 ・・・・・・・・・・・・・・・・ 155
６．２－３　光音響検出器の感度および空間分解能 ・・・ 156
６．２－４　シングルショット自己相関計測 ・・・・・・・ 159
６．３　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 161

第７章　紫外光学素子の吸収損傷機構 ・・・・・・・・・・・・・・・ 162

７．１　紫外光学材料 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 162
７．２　光音響法を用いた吸収および損傷しきい値の測定 ・・・・ 163
７．２－１　光音響法 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 164
７．２－２　多光子吸収の解析 ・・・・・・・・・・・・・・ 165
７．２－３　被測定試料 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 166
７．２－４　測定装置 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 167
７．２－５　非線形吸収および損傷しきい値 ・・・・・・・ 170
７．２－６　まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 176
７．３　光電流法を用いた電子雪崩の観測 ・・・・・・・・・・・・ 177
７．３－１　アルカリ結晶中の光電流 ・・・・・・・・・・ 177
７．３－２　電子雪崩損傷の理論的解析 ・・・・・・・・・ 178
７．３－３　キャリア密度の時間分解計測 ・・・・・・・・ 180
７．３－４　まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 183
７．４　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 184

第８章　結論 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 186

８．１　研究内容と成果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 186
８．２　超高出力ＫｒＦレーザーへの応用 ・・・・・・・・・・・・ 188

第１章　緒論

１．１　研究の背景

レーザーは時間的・空間的にコヒーレンスの高い光を生成し得る。これらのコヒーレンスは単色性、集光性といったレーザーの特性を顕す。

一方、光の位相制御を行い、周波数空間においてコヒーレンスを高めると、超短パルス光が発生する。最近の光パルス圧縮技術、位相制御術は６ｆｓ[1)]に及ぶ超短パルス光を発生させている。このパルスは０．５ＰＨｚの僅か３サイクルの波から形成される。周波数とパルス幅はフーリエ共役であるので、より短いパルスを得るには、より広い周波数帯域において波の位相制御を行わなくてはならない。このような、超短パルス光の発生には１００ＴＨｚにおよぶ利得帯域が必要であり、電気回路やマイクロ波では到達できない領域である。

レーザーの持つ空間・周波数コヒーレンスを共に利用すると、非常に小さな空間に強力な電場を発生出来る。[2)]例えば、僅か１Ｊのエネルギーでもパルス幅１００ｆｓで直径１０μｍに集光すると10^{19}W／cm^2 [3)]の光強度に達し、ボーア半径における原子内電場を１桁越える電場に相当する。このような超強電場[4)]は物質の内核電離、多光子電離、多価イオン生成[5)]、あるいは非線形光学を用いた高次高調波発生[6)]等の新しい応用に用いることができる。また、フェムト秒領域では熱伝導や物質の移動が無視できるので物質表面の局所加熱が可能であり、固体密度プラズマ[7)]の生成や精密光加工等[8)9)]に応用される。

これら応用においてレーザーの短波長化[10)]はより有利である。プラズマ生成においてはターゲット表面の高密度領域にまで、効率よくレーザー光を吸収させることができる。また、短波長光では表皮効果によって固体内の吸収層が薄くなり、高い密度でエネルギー注入を行える。回折によるビーム広がりが小さく、高い集光強度が得られる。非線形光学による高次高調波発生[11)]や多光子過程においては、少ない光子数でより高いエネルギー準位に励起することが可能になる。

１．２　超短パルスＫｒＦレーザー

超短パルスレーザーには前記のように短波長化が望まれる。ガラスレーザーの４倍波に相当する２４９ｎｍの紫外域で発振するＫｒＦレーザーは、最短３０ｆｓパルスを増幅できる１１ＴＨｚの利得帯域を持ち、最も有力な紫外超短パルスレーザーである。

その特長として、

Ⅰ．紫外域で最も高い１０％を越える内部効率を持つこと、
Ⅱ．Ｂｏｕｎｄ－Ｆｒｅｅ遷移による広い利得帯域を持つこと、
Ⅲ．気体レーザーであるためにレーザー媒質自身の非線形効果が生じにくいこと、
Ⅳ．電子ビーム励起等により大口径化が可能であること、
Ⅴ．飽和フルーエンスが低くエネルギー引き出しが容易であること、

があげられる。

これらの特長から超短パルスＫｒＦレーザーは世界的に研究が行われている。可視レーザーの高調波光を種光として、最短パルス幅４５ｆｓ[12]が得られており、ピーク出力も４ＴＷに達している。しかし、超短パルスかつ高出力のレーザー光発生には紫外特有の問題がある。

①上準位寿命が短く、かつ利得が高い為に、増幅された自然放出光（ＡＳＥ：Amplified Spontaneous Emission）を強く発生する。[13]ＡＳＥは光のノイズである。ＡＳＥは小信号利得で増幅され、増幅システム最終段におけるＡＳＥのエネルギーはレーザーパルスエネルギーに匹敵するか、場合によっては上回ることすらある。ＡＳＥはレーザー増幅器の利得、効率を低下させる。その上、レーザー照射に先だってターゲットを励起したり、先行プラズマを生成したりする。僅かなＡＳＥの存在によっても、プラズマへのエネルギー吸収量[14]、ターゲット表面から発生するＸ線のスペクトル[15][16]に大きな変化があることが報告されている。

②ＫｒＦエキシマの生成に１０ｎｓ前後の時間を要するので、高い生成効率を得るには数１０ｎｓ以上の時間にわたり励起を行う必要がある。一方、上準位寿命が短いので、短パルス光により引き出されるエネルギーはわずかである。故に、時間積分値で考えるとエネルギー引き出し効率が非常に低い。ナノ秒以下の短パルス光では実効的な内部効率は１％以下に減少する。

③紫外域では特に光学材料の分散、光Ｋｅｒｒ効果が大きく、レーザーパルスの時間的・周波数的広がりが生ずる。パルス広がりは入力パルス幅が短い程著しく、非線形的に増加する。５００ｆｓ以下のパルス幅では入力パルスを短くすると出力パルスがより長くなるという「パルス幅の逆転現象」が起きる。

④第２高調波（ＳＨＧ）光を発生できる結晶がなく、パルス幅の測定は多光子励起蛍光法によっている。検出感度が不十分で、蛍光体の劣化が激しい。

⑤多光子吸収等の非線形吸収がターゲットのみならずレーザー装置内部の光学素子において生じ、その損傷しきい値が可視、赤外域に比べ低い。高出力レーザーを開発しても、その光を反射出来るミラーがない。

超短パルスＫｒＦレーザーの実用化にはこれら問題の解決が不可避である。

１．３　研究の目的と成果

本研究では超短パルスＫｒＦレーザーを実用化する為の要素技術の開発を行うことを目的とした。

第２章では、ＫｒＦエキシマや紫外レーザーの性質に基づく上記の問題点を詳述し、本研究に至った動機、本研究の位置づけを示す。

第３章では、ＡＳＥの除去を目的として、紫外用可飽和吸収体の開発を行った。

可飽和吸収体は光強度の高いレーザー光によってのみ飽和し、低光強度・高エネルギーのＡＳＥを吸収する媒質である。可飽和吸収体は赤外及び可視域では広く用いられている技術であるが、紫外域では後に述べるように光子エネルギーの大きさから実用となる媒質が存在しなかった。本研究では、紫外可飽和吸収体が満たすべき条件を明確にし、候補となる可飽和媒質の特性測定を行った。紫外可飽和吸収体の使用によりＡＳＥはレーザーパルスの10^{-8}以下の強度まで減少し、実用上全く問題ないレベルになった。

第４章では、レーザーシステム内部の非線形効果を緩和する為に、２重可飽和吸収体と増幅器の飽和を利用して、レーザー増幅器内部でパルス圧縮を行うシステムを開発した。パルス幅１０ｐｓの入力パルスをレーザー増幅器列中で４００ｆｓにまで圧縮した。本方式ではパルス広がりや非線形効果を誘発しやすいサブピコ秒パルスは最終段増幅器中で発生するので、超短パルス高光用度にさらされる光学素子を著しく減少出来る。レーザーパルスの広がりやチャープを防ぐことが可能になった。

第５章では、引き出し効率の改善を目的とした外部パルス圧縮法を開発した。ナノ秒パルスからピコ秒パルスへの高い圧縮比を目的として、後方ラマンパルス圧縮法の可能性を検討した。これまでその圧縮限界は２次ストークス光へのエネルギー流出によって制限されていたが、本研究ではラマン媒質の位相緩和時間以下の短パルスストークス光を用いてラマン媒質を過渡状態とし、高次ストークス光の発生を抑制した。圧縮実験を行い、これまで報告されている値の３０倍以上に相当する光強度圧縮率１５０倍を得た。

第６章では、超短パルス光の高感度測定を目的として、光音響法を用いた紫外シングルショット自己相関計を開発した。これまでの多光子励起蛍光法に比べ、約２桁高い感度でシングルショット自己相関関数を測定した。

第７章では、光学素子内部の吸収観測法を開発し、紫外レーザー損傷機構を明かにした。光音響法を用いて光学薄膜内部の多光子吸収を初めて観測し、光学材料と

損傷機構の関係を明かにした。さらに、電子雪崩損傷を光電流を用いた時間分解吸収計測により観測し、損傷しきい値のキャリア寿命依存性を明かにした。

第８章では、本研究の成果をまとめ結論とした。

参考文献

[1] R.L.Fork, C.H.Brito Curz, P.C.Becker, and C.V.Shank:Opt. Lett., Vol.12, No.7, pp.483−485 (1987).

[2] K.Yamakawa, C.P.J.Barty, H.Shiraga, and Y.Kato:IEEE vol.QE−27,pp.288−294(1991).

[3] T.S.Luk, A.McPherson, G.Gibson, K.Boyer and C.K.Rodes,Opt.Lett.vol.14. pp.1113−15(1989).

[4] C.K.Rodes:Science,Vol.229,1345(1985).

[5] T.S.Luk, U.Johann, H.Jara, I.A.McIntyre, A.McPherson, A.P.Schwarzenback, K.Boyer and C.K.Rodes:Proc.of SPIE,vol.664.pp.223−228(1986).

[6] K.Miyazaki, and H.Sakai:J.Phys.B,vol.25,pp.183−9(1992).

[7] R.Fedosejeves, R.Ottman, R.Sigel, G.Kuhnle, S.Szatmari, and P.F.Schafer: Appl.Phys.B,vol.B50, pp.79−99(1990).

[8] S.Kuper and M.Stuke:Appl.Phys.Lett.vol.54,pp.4−6(1988).

[9] S.Kuper and M.Stuke:Appl.Phys.B44,pp.199−204(1987).

[10] S.Szatmari, F.P.Schafer:Proc.SPIE,vol.1268,pp.22−9(1990).

[11] N.Sarukura, K.Hata, T.Adachi, R.Nodomi, R,Watanabe, M.Watanabe, and S.Watanabe:Phys.Rev.A,vol.43,pp.1669−72(1991).

[12] S.Szatmari and F.P.Schafer:Ultra−fast Phenomena Ⅵ ,pp.82−86(1988).

[13] D.D.Lowenthal and J.M.Eggleston:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−22, pp.1165−1173(1986).

[14] H.Yoneda, H.Nishioka, A.Sasaki, K.Ueda and H.Takuma:"LASER INTERACTION" ed. by H.Hora and H.Miley, vol.9.pp.149−160(1991).

[15] M.M.Murnane, H.C.Kapteyn, and R.W.Falcone:Phys.Rev.Lett.,vol.62,pp.155−158(1989).

[16] U.Teubner, G.Kuhnle, and F.P.Schafer:Appl.Phys.Lett.vol.59,pp.2672−2674(1991).

第２章　ＫｒＦレーザーとその短パルス増幅における問題点

ここでは超短パルス光源としてのＫｒＦレーザーの特徴について述べ、その優位性と、実用に際して解決すべき問題点を明確にする。

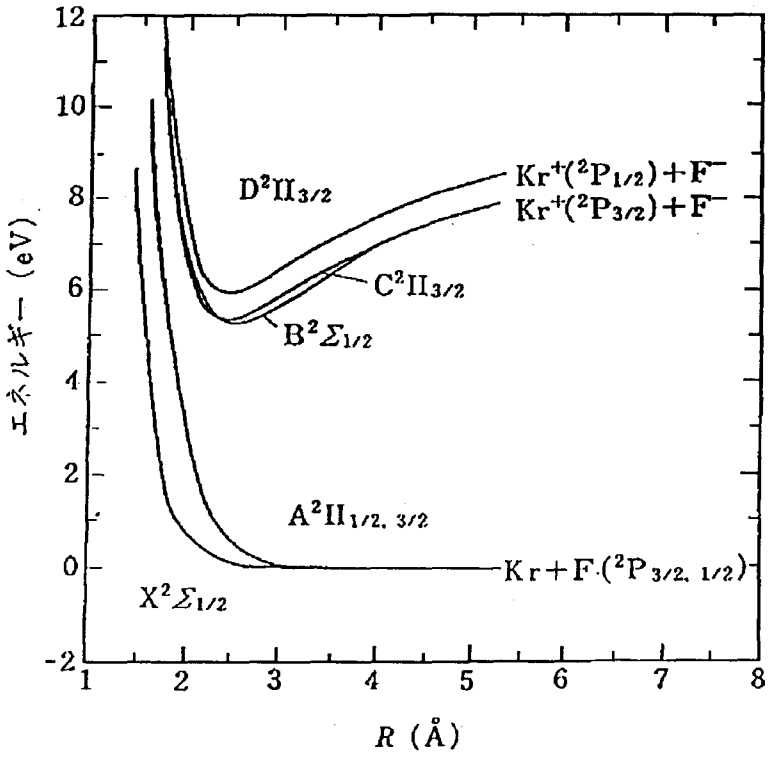
２．１　ＫｒＦエキシマの特徴

はじめにＫｒＦエキシマの生成・脱励起反応の特徴と、それが超短パルス光発生・増幅に及ぼす影響について考察する。

２．１－１　利得帯域と最短パルス幅

エキシマ”ｅｘｃｉｍｅｒ”とは”ｅｘｃｉｔｅｄ　ｄｉｍｅｒ”の略語で励起状態でのみ安定に存在する励起２量体の総称である。最初のエキシマレーザーの発振は１９７１年に希ガスの液体（Xe_2）を用いて行われた。１９７２年に気体のXe_2レーザーが発振し、Kr_2やAr_2等の希ガスエキシマレーザーが誕生した。これら同種類の原子からなるエキシマを”ｅｘｃｉｐｌｅｘ”と呼ぶこともある。希ガスエキシマレーザーは現在でも真空紫外域の高出力光源として開発が進められている。

ＫｒＦに代表されるハロゲン化希ガスエキシマ[1]は希ガスエキシマよりもレーザー媒質自身の吸収が小さく、また、低圧力で動作できるので大出力化が容易である。ハロゲン化希ガスエキシマは希ガスイオンとハロゲンのイオン結合状態であり、Ｘｅ，Ｋｒ，ＡｒとＢｒ，Ｃｌ，Ｆ間の任意の組み合わせにおいて発振が観測されている。[2]ＫｒＦエキシマのポテンシャル曲線をＦｉｇ．２－１に示す。ＫｒＦエキシマは電離過程（$Kr^{+}+F^{-}$）または励起過程（$Kr^{*}+F_2$、$Kr^{*}+F$）を通して生成される。励起状態はエネルギーの低い順にＡ（$^2\Pi_{3/2、1/2}$）、Ｂ（$^2\Sigma_{1/2}$）、Ｃ（$^2\Pi_{3/2}$）、Ｄ（$^2\Pi_{1/2}$）と呼ばれ、基底状態は、Ｘ（$^2\Sigma_{1/2}$）である。主たるレーザー発振線の２４９ｎｍ光はＢ→Ｘ間の遷移で得られ、他にＣＡ遷移、ＤＸ遷

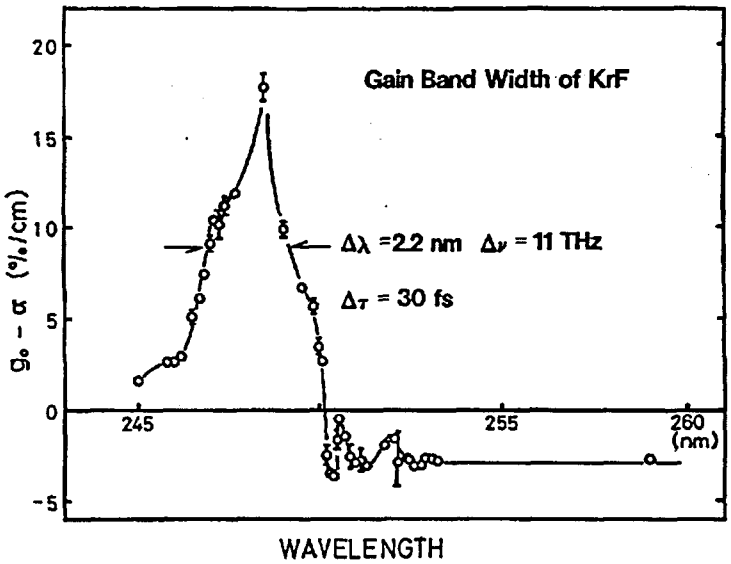


Ｆｉｇ．２－１　ＫｒＦエキシマのポテンシャル曲線。

移が観測出来る。励起状態は結合状態を示しＢＸ間の放射寿命は６ｎｓである。一方、下準位は核間距離の増加に従ってエネルギーが減少する反発（repulsive）状態である。しかし、ＸｅＦやＸｅＣｌレーザーのように下準位が弱い結合状態であるハロゲン化希ガスエキシマも存在する。

このようにＫｒＦエキシマレーザーは束縛－自由遷移を行うために下準位からの吸収が無視でき、上準位寿命が短いにもかかわらず高い効率を示す。さらに核間距離の広い範囲においてレーザー遷移が起こり得るために、広い利得帯域が得られる。Ｆｉｇ．２－２は筆者が波長可変色素レーザーの第２高調波をプローブ光として用いて実測したＫｒＦレーザー利得係数の波長依存性である。後述するＫｒＦエ

キシマ生成・脱励起過程における中間生成体の吸収を考慮しても１１ＴＨｚの実効利得帯域を持つ。



Ｆｉｇ．２－２　ＫｒＦレーザーの利得帯域。
縦軸は、レーザー媒質の吸収を含んだ実効利得係数である。

フーリエ変換で決まる最も狭い周波数幅を持つパルスをフーリエ限界パルスと呼び、ｓｅｃｈ^{2}型のパルスを仮定した場合パルス幅τ_Lと$\Delta\nu$の間には

$$\Delta\nu \cdot \Delta\tau_L = 0.32 \qquad (2-1)$$

の関係がある。[3] よって増幅可能な最短パルス幅は、

$$\tau_L = \frac{0.32}{\Delta\nu\ F(g)} = \frac{0.32}{11\times10^{15}\ F(g)} = \frac{29}{F(g)}\ (fs) \qquad (2-2)$$

である。ここで、Ｆ（ｇ）は利得の増加による実効的な利得帯域の減少 "gain narrowing" を示す定数である。一例として、入力レーザーエネルギー１μＪを２０ｍＪまで増幅する標準的なＫｒＦ増幅器列を考えるとＦ（ｇ）＝０．２７であり、およそ１００ｆｓのパルスまで増幅出来る。

２．１－２　エキシマ生成時間とモード同期法の限界

レーザー媒質はＫｒとF_2を希ガスのバッファーガス（Ｈｅ，ＮｅまたはＡｒ）中に混合したもので、放電[4]または電子ビーム[5][6][7]を用いて励起する。Ｆｉｇ．２－３は電子ビーム励起ＫｒＦレーザー媒質中で起こる反応[8]を示している。ＫｒＦの主たる生成反応は、希ガスイオンを経由する場合には

$$Kr^+ + F^- + M \rightarrow KrF^* + M \qquad (2-3)$$

また、励起原子を経由する場合では

$$Kr^* + F_2 \rightarrow KrF^* + F \qquad (2-4)$$

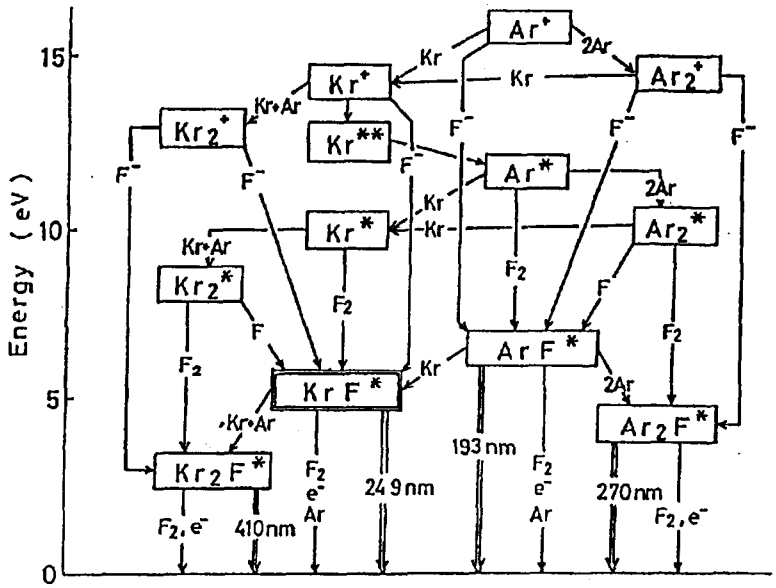
である。前者をイオンチャンネル、後者を励起チャンネルと呼ぶ。ここでＭは希ガス原子を指す。F^-イオンはF_2の付着性解離

$$F_2 + e_s \rightarrow F^- + F \qquad (2-5)$$

より生成される。

電子ビーム励起ではガス中の電子エネルギーが大きいので前者が支配的であり、放電励起では後者が重要である。ＫｒＦエキシマの生成過程に多くのイオンや励起状態の原子・分子が存在するが、最終的には殆ど全てがＫｒＦの生成に寄与するので生成の分配比は１に近い。ＫｒＦの結合エネルギーは５ｅＶであり、Ａｒの平均励起エネルギーは２６．２ｅＶであるからイオンチャンネルのみで約２０％の生成

効率が得られる。励起チャンネルを含めた総合的な生成効率は２５％に達する。



Ｆｉｇ．２－３　電子ビーム励起ＫｒＦレーザー
媒質中の主な反応過程。

上記ＫｒＦ生成過程は幾つかの中間生成体の反応を経由しているために時間を要する。イオンチャンネルでは数ナノ秒であるが、励起チャンネルでは比較的長く数１０ｎｓの時間を必要とする。十分な生成効率を得るには数１０ｎｓ以上の励起時間が必要である。しかし、ＫｒＦ生成に必要なＦ２分子は時間と共に減少し、一定量のＫｒＦを生成すると枯渇（burn-up）する。Ｆ２はＫｒＦレーザー光を吸収したり、ＫｒＦエキシマを脱励起したりするので初期のＦ２密度には上限がある。Ｆ２の減少量は励起エネルギーに比例するから、利得持続時間は励起強度に反比例する。高い利得の得られる１MW／ｃｍ^{2}以上の高励起条件では利得持続時間はおよそ１００ｎｓである。

通常、超短パルス光の発生にはモード同期法がよく用いられる。[9] しかし、これらＫｒＦエキシマ生成条件はＫｒＦレーザー発振器にモード同期をかけることを難しくしている。放電励起や電子ビーム励起には少なくとも３０ｃｍの共振器長が必

要であり、その往復時間は２ｎｓである。１００ｎｓで励起を行ってもレーザーパルスは共振器内を５０回程度しか往復出来ず、モード同期が要求する十分な位相変調は期待出来ない。[10] 共振器往復時間と上準位寿命の比を用いる緩和発振法も共振器往復時間が長いので不可能である。

以上の理由から、ＫｒＦレーザー発振器によって直接超短パルス光を発生させることは難しい。このため、超短パルスＫｒＦレーザーを構築するには、可視あるいは赤外域の超短パルスレーザー光を非線形光学結晶により波長変換して超短パルス紫外光を得る必要がある。[11]

２．１－３　エネルギー蓄積時間と短パルス引き出し効率

ＫｒＦレーザー上準位の速度方程式はR_pを励起速度として、

$$\frac{dn}{dt} = R_p - \left(\frac{\sigma I_L}{h\nu} + \frac{1}{\tau_{eff}} \right) n \qquad (2-6)$$

と表される。ここで、ｎ：ＫｒＦエキシマの密度、$h\nu$は光子エネルギー、σは誘導放出断面積（$2.4\times10^{-16}\,cm^2$）、I_Lはレーザー光強度、τ_{eff}はＫｒＦエキシマの緩和過程における実効寿命である。光強度が零（小信号状態）におけるＫｒＦエキシマの密度をn_0とすると、定常状態で$n = n_0/2$となる光強度I_sで利得係数が小信号利得係数の１／２となるので、このI_sを飽和光強度と呼ぶ。光強度がI_sの時には、誘導放出による脱励起速度とその他の脱励起速度が等しいので、I_sとτ_{eff}の間には

$$\frac{\sigma I_s}{h\nu} = \frac{1}{\tau_{eff}} \qquad (2-7)$$

の関係がある。

ここで、レーザー出力とτ_{eff}の関係をまとめておく。レーザー増幅器の小信号利得係数$g_0 = \sigma n_0$は（２－７）式より$g_0 = R_p \tau_{eff}$で与えられる。初めに、励起時間とエネルギー引き出し時間の等しい定常増幅を考えると、上準位から引き

出し可能な最大レーザー光強度I_{max}は利得長をLとして

$$I_{max} = g_0 I_S L = R_p \frac{h\nu}{\sigma} L \qquad (2-8)$$

と求められる。I_{max}はτ_{eff}に無関係である。

一方、短パルス光増幅における引き出し可能な最大フルーエンスE_{max}は（２－１５）式で与えられる飽和フルーエンスＥｓを用いてτ_{eff}と

$$E_{max} = g_0 E_S L = R_p \tau_{eff} \frac{h\nu}{\sigma} L \qquad (2-9)$$

の関係にある。このように、短パルス光増幅では、τ_{eff}は直接レーザー出力部に影響を与えるパラメータである。

ＫｒＦレーザーのτ_{eff}はレーザー媒質の励起条件により大きく異なる。ＫｒＦエキシマの脱励起は自然放出と衝突過程に分けられ、後者の代表的な相手は希ガス、電子、F_2等である。主な衝突反応をまとめると、下記のようである。

$$KrF^* + e_s \rightarrow Kr + F + e_s \qquad (2-10)$$

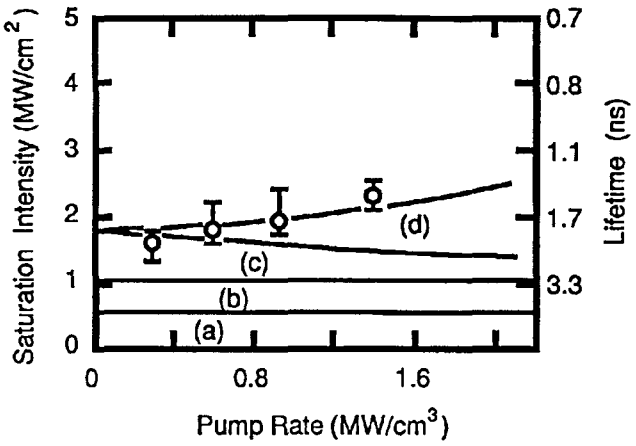
$$KrF^* + F_2 \rightarrow Kr + F + F + F \qquad (2-11)$$

$$KrF^* + M \rightarrow Kr + F + M \qquad (2-12)$$

これらの脱励起反応に依存する上準位の実効寿命τ_{eff}は（２－７）式の関係より飽和光強度Ｉｓを測定して求めることが出来る。

筆者が行った電子ビーム励起ＫｒＦレーザーの増幅特性の測定結果[12]から求めた脱励起過程の励起強度依存性をＦｉｇ．２－４に示す。測定条件は、レーザーパルス幅１２ｎｓ、ガス混合比Ａｒ／Ｋｒ／F_2＝９３．７／６／０．３である。横軸は励起強度、縦軸は飽和光強度で表した脱励起速度である。ここで、Ｉｓ＝１ＭＷ／cm^2はτ_{eff}＝３．３ｎｓに相当する。図中の実線は後に示す飽和光強度の圧力依存性の測定結果とあわせて解析した脱励起過程の割合を示す。図中の記号（ａ）

は自然放出を、（ｂ）はＦ２および希ガスとの２体衝突脱励起を示す。同様に（ｃ）は希ガス３体衝突脱励起、（ｄ）は電子衝突脱励起の割合を示している。３体衝突脱励起速度は負のガス温度依存性[13]を持っているので、ガス温度の高くなる高励起密度では減少する。一方、高励起密度ではガス中で生成される２次電子密度が増大する為に電子脱励起速度が増加する。これら脱励起速度の合計は励起密度と共に増加を示す。



Ｆｉｇ．２－４　脱励起速度の励起強度依存性。
(a)自然放出、(b)希ガスまたはF2２体衝突、
(c)希ガス３体衝突、(d)電子衝突、
ガス圧力は２．５atmである。

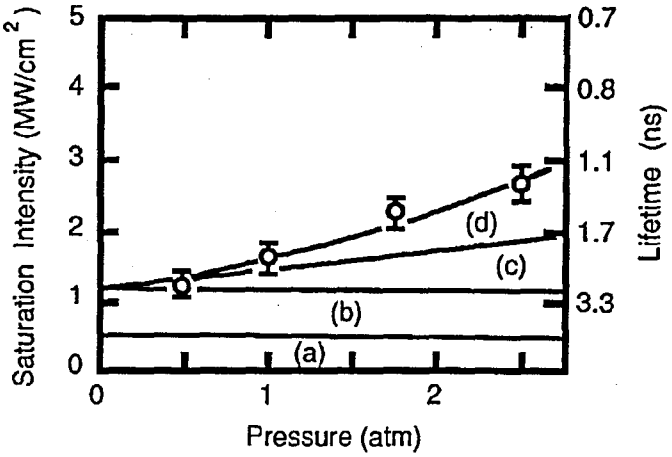
一方、希ガスとの３体衝突によって３原子エキシマを生ずる脱励起反応

$$KrF^* + M + M \rightarrow MKrF^* + M \qquad (2-13)$$

は、Ｆｉｇ．２－５に示すように圧力の２乗に比例して増加し、高圧力で主要な脱励起過程である。ここで、（ａ）は自然放出、（ｂ）は電子衝突による脱励起、（ｃ）は希ガスとの２体衝突脱励起、（ｄ）は希ガス３体衝突脱励起を示す。

これら脱励起反応の振る舞いから、短パルス光増幅において効率を維持するには、極端な高励起密度、あるいは、高ガス圧力における動作を避ける必要がある。しかし、ＫｒＦエキシマの生成反応速度を維持する必要性から１ａｔｍ程度に低圧力化

の限度があり、実効寿命は長くとも２ｎｓである。励起時間の数１０ｎｓに比べると１桁以上小さく、ＫｒＦレーザーの動作はいわゆるエネルギー非蓄積型である。このために、単一パルスによる引き出し効率は低い。効率改善のために外部パルス圧縮法が用いられる。詳細は２．４で述べる。

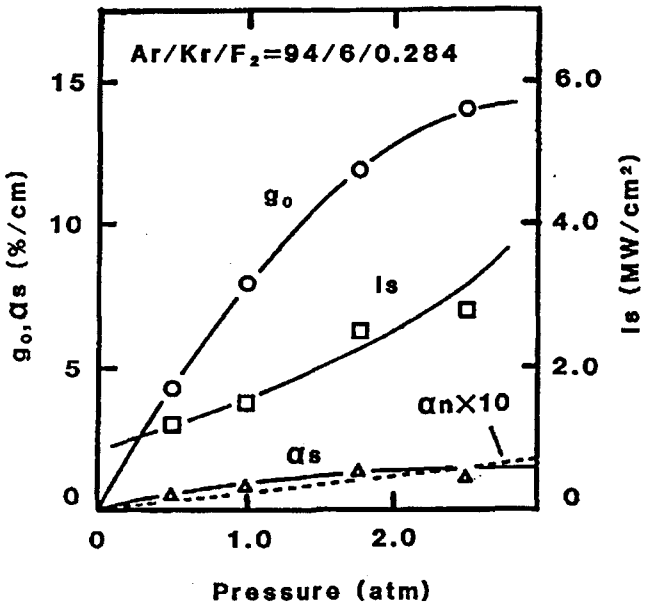


Ｆｉｇ．２－５　脱励起速度の圧力依存性。
(a)自然放出、(b)電子衝突、
(c)希ガスまたは$F_2$２体衝突、
(d)希ガス３体衝突、
励起密度は圧力２．５atmにおいて１．４MW/cm^{2}である。

２．１－４　利得・吸収係数

ＫｒＦレーザーは誘導放出断面積が大きく、利得が高いレーザー媒質である。筆者が電子ビーム励起ＫｒＦレーザーについて測定した利得・吸収の圧力依存性をＦｉｇ．２－６[14]に示す。媒質の励起密度は１．４MW／ｃｍ^{3}である。図中g_0は小信号利得係数を示す。α_sは可飽和吸収係数、α_nは非飽和吸収係数である。１０％／ｃｍを超える高い利得係数が容易に得られる。仮に増幅器の長さが

８０ｃｍならば、１パス利得は３０００倍に達する高利得レーザー媒質である。



Ｆｉｇ．２－６　ＫｒＦレーザーの利得、非飽和吸収係数の圧力依存性。
ｇ₀：小信号利得係数、
αｓ：可飽和吸収係数
αｎ：非飽和吸収係数。
励起密度は圧力２．５atmにおいて１．４MW/cm²である。

一方、ＫｒＦエキシマ自身の吸収は無視できるが、生成反応中のイオン・励起原子等の中間生成物の吸収が大きい。脱励起により発生するハロゲン化希ガス３原子エキシマ（Kr_2F^*等）はＫｒＦレーザーの主要な吸収体と考えられていたが、１９８７年に吸収断面積の絶対測定[15]がなされ、その値はそれまで見積もられていた値の１／５であることが明らかになった。また、Kr_2F^*はＫｒＦの脱励起反応により生成するので、利得が強く飽和している場合にはその吸収を無視することが出来る。主な吸収体は希ガスのイオン等ＫｒＦエキシマの生成反応中に発生する中間生成物（希ガスのイオンや励起状態）である。可飽和吸収αｓの飽和光強度は定常動作（ナノ秒領域）で数１００MW／ｃｍ²である。通常のレーザー動作条件、数MW／ｃｍ²から２０MW／ｃｍ²の光強度では、吸収飽和は無視できるので、αｓは実効的に非飽和吸収と見なして差し支えない。

これらレーザー媒質の吸収αｓ＋αｎはＦｉｇ．２－６に示したように、利得の１／１５～１／１０程度存在し、上準位からのエネルギー引き出し効率を制限する。

数１０ｎｓ領域のレーザーパルス増幅（定常増幅）では大きな問題であり、非常に多くの研究がなされた。しかし、短パルス増幅では吸収の影響は小さくなり、むしろ次に述べるＡＳＥが主に増幅器の利得、効率を制限する。

２．２　増幅システム中におけるＡＳＥの成長

レーザー上準位の自然放出寿命は遷移周波数の２乗に反比例するので、短波長レーザーでは自然放出光が容易に発生する。通常のＫｒＦレーザー増幅器では、小信号利得係数と利得長の積は g_0L＝５～１０と非常に大きいので、自然放出光は容易に増幅されＡＳＥ（ Amplified Spontaneous Emission ）を発生する。

ＫｒＦレーザーの上準位寿命は短いので、ＡＳＥは増幅器が励起されると同時に発生し、励起時間内では継続的である。レーザー増幅時でも、増幅器は飽和しても利得をすぐに回復するので、ＡＳＥエネルギーはほとんど減少しない。ＡＳＥのパルス幅は励起時間に等しいから、たとえその強度は低くとも、時間積分されたそのエネルギーは無視できない。

ＡＳＥはレーザーパルスと共に後続の増幅器中で増幅を受ける。特に、発振器あるいは前段増幅器中で発生するＡＳＥは、後続増幅器の利得が大きいので問題である。

短寿命のＫｒＦエキシマから発生するＡＳＥのパルス幅は、励起時間とほぼ等しく、そして上準位寿命よりも十分長い。ゆえに、その増幅過程は定常状態とみなすことが出来る。一方、超短パルス増幅では、たとえ寿命の短いＫｒＦレーザーであっても、（僅かな蓄積エネルギーではあるが）エネルギー蓄積型動作である。ここでは、定常増幅と蓄積型増幅の違いに着目し、レーザーパルスとＡＳＥの増幅特性の相違について考察する。

２．２－１　短パルス光増幅特性

レーザーのパルス幅 τ_L が上準位の実効寿命 τ_{eff} に比べ十分短い場合、レーザ

ー増幅器はエネルギー蓄積型の動作を行う。この場合の増幅特性は Frantz−Nodvik のモデル[16]により記述出来ることが知られている。ここで、レーザー媒質は十分に広い利得帯域を持ち、均一広がりしていることを仮定する。前述のようにＫｒＦエキシマの利得帯域幅は十分に広いので、数１００ｆｓのパルス幅ではこの仮定は十分に満たされる。

Frantz−Nodvik のモデルでは増幅器への入力フルーエンスをＥ in とした場合、出力フルーエンスＥ out は次の式で与えられる。

$$E_{out} = E_S \cdot \log \{ \exp(g_0 L) \cdot [\exp(E_{in}/E_S) - 1] + 1 \} \qquad (2-14)$$

ここで、ｇ０は小信号利得、Ｌは利得長、Ｅｓは飽和フルーエンスを示している。誘導放出断面積をσ、ｈをプランク定数、νをレーザーの周波数とした場合、Ｅｓは

$$E_S = \frac{h\nu}{\sigma} \qquad (2-15)$$

で与えられる。ＫｒＦレーザーの飽和フルーエンスはパルス幅５ｐｓ〜２００ｆｓの広い範囲でＥｓ＝２ｍＪ／ｃｍ^2（実測値）[17]であって、パルス幅依存性はほとんどない。（２−１４）式ではレーザ媒質の吸収を考慮していないので、Ｅ out はＥ in の増加により増え続け、最大Ｅ max ＝ｇ０ＥｓＬまで引き出すことが出来る。

一方、レーザー媒質に非飽和吸収が存在する場合、増幅器の１点における引き出しエネルギーは吸収係数をαとして

$$\frac{dE}{dz} = g_0 E_S [1 - \exp(-E_{in}/E_S) - \alpha/g_0 (E_{in}/E_S)] \qquad (2-16)$$

と与えられる。引き出し効率η_{ex}は

$$\eta_{ex} = \frac{E_{out} - E_{in}}{g_0 E_s L} = \frac{\frac{dE}{dz}}{g_0 E_s} \qquad (2-17)$$

である。d（dE／dz）／dE in＝0よりη exの最大値η optは

$$\eta_{opt} = 1 - \frac{1}{\gamma}(1 + \log \gamma) \qquad (2-18)$$

と求められ、この時の入力フルーエンスE optは

$$E_{opt} = E_s \log \gamma \qquad (2-19)$$

ここで、γは小信号利得と非飽和吸収の比を表し

$$\gamma \equiv \frac{g_0}{\alpha} \qquad (2-20)$$

である。KrFレーザーでは、γ＝10～15である。γ＝15を仮定すると η opt＝75％がE opt＝5．4mJ／cm^{2}の時に得られる。

一方、定常増幅ではその最大引き出し効率η opt,ssは

$$\eta_{opt,ss} = \frac{(\sqrt{\gamma} - 1)^2}{\gamma} \qquad (2-21)$$

で与えれる。γ＝15の時、η opt,ss＝55％である。

以上示したように、短パルス増幅では吸収が引き出し効率に与える影響は定常増幅に比べ小さい。

2．2－2　ASE増幅特性

定常増幅における光強度Iの増加は

$$\frac{dI}{dz} = \frac{g0}{1+I/I_S} - \alpha \qquad (2-22)$$

で与えられる。ここでＩｓは飽和光強度で（２－７）式で示される。ＫｒＦレーザーの上準位寿命は短くＡＳＥのパルス幅は励起時間τ_pにほぼ等しいから、ＡＳＥの飽和フルーエンスＥｓ（ＡＳＥ）は

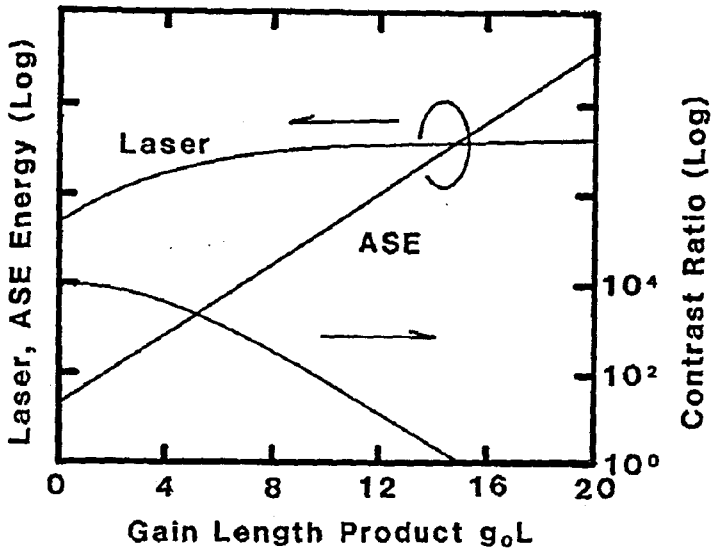
$$E_S(ASE) = \tau_p I_S \qquad (2-23)$$

である。短パルス光の飽和フルーエンス（２－１５）を用いて（２－２３）を書き直せば

$$E_S(ASE) = \frac{\tau_p}{\tau_{eff}} E_S(Laser) \qquad (2-24)$$

となる。典型的な値τ_p＝３０ｎｓ、τ_{eff}＝１．５ｎｓを代入するとＡＳＥの飽和フルーエンスは短パルスレーザー光よりも２０倍大きくなる。このために、短パルス光は飽和に達してもＡＳＥは小信号利得のまま指数関数的に増幅され、短パルス光とＡＳＥのエネルギー比（以下「コントラスト比」と呼ぶ）は著しく劣化する。Ｆｉｇ．２－７にレーザー増幅器中におけるレーザー光とＡＳＥのエネルギー比を示す。計算条件はτ_p＝３０ｎｓ、E_s＝２ｍＪ／ｃｍ^2、I_s＝２ＭＷ／ｃｍ^2、E_{in}＝E_s／１０である。初期のコントラスト比として１０^{4}を与えてもｇ０Ｌ＝１５の増幅を行うとレーザーと等しいエネルギーのＡＳＥが発生することが明かである。

ＡＳＥを減少させる一つの手段は、短パルス光に対し増幅器が飽和しないように小信号利得を下げ、かつ大口径の増幅器を用いることである。しかし、利得飽和はエネルギー引き出しにより生ずることを考慮すれば、コントラスト比の劣化を完全に防ぐことは原理的に不可能である。また、多段、小利得、かつ大口径の増幅器の準備は、効率やコストにも犠牲を払う必要がある。



Ｆｉｇ．２－７　ＡＳＥとレーザー光の増幅特性。
τp=30ps,Es=2mJ/cm2,Ein=Es/10,Is=2MW/cm2、
初期のコントラスト比は１０^{4}である。

２．２－３　レーザー光とＡＳＥの分離

レーザー光とＡＳＥを分離するには、個々の性質の違いを利用することが必要である。Ｔａｂｌｅ　２－１はレーザー光とＡＳＥの違いをまとめたものである。ＡＳＥは非常に高い利得により増幅を受けているので、そのスペクトル幅はむしろ超短パルスレーザー光よりも狭く、波長選択フィルターによる抑制は無理である。また、空間フィルターを用いた方法も、レーザー光軸上のＡＳＥを分離することは出来ない。

ＡＳＥが選択的に成長する原因は励起時間が上準位寿命に比べて長いことによるから、時間領域における分離が原理的に有効である。ポッケルスセル等の光スイッ

チを用いて抑制する方法もあるが、ＫｒＦレーザーではサブナノ秒の制御が要求されるので電気的ジッターを抑える必要がある。一方、光強度の違いを利用した可飽和吸収体では、ジッターの問題がなく超短パルスシステムへの適用が容易である。

Ｔａｂｌｅ　２－１　レーザー光とＡＳＥの分離方法。

	スペクトル	ビーム広がり角	時間幅	光強度
レーザー光 ＡＳＥ	～０．３ｎｍ ～０．３ｎｍ	数１０μｒａｄ 同上	ｆｓ～ｐｓ 10ns～100ns	１０$^{4-6}$ １
分離の可否	不可	不可	可	可
分離方法			ポッケルスセル カーセル	可飽和 吸収体

２．２－４　可飽和吸収体と残留吸収

可視あるいは赤外のレーザーでは、可飽和色素はモード同期やＡＳＥの抑制の代表的手段として広く用いられている。しかし、紫外域においては励起状態からの非飽和吸収[18]が生じレーザー光の損失が無視できない。非飽和吸収の少ない解離性の媒質（オゾン）[19]が紫外用の可飽和吸収体として一時注目されたが、飽和フルーエンスが大きいために超短パルス光では飽和しないこと、解離性であるため一度飽和すると吸収が回復しないこと、などの問題が明かとなり短パルスレーザーに用いられることはなかった。

このような理由から、紫外短パルスシステムで可飽和吸収体は実用とならず、ＡＳＥの根本的な解決法はなかった。本研究では飽和フルーエンスが小さく、かつ残留吸収の小さい可飽和色素を開発し、ＡＳＥの問題を解決した。詳細は第３章で述

べる。

２．３　自己位相変調と群速度分散によるパルス広がり

光強度が強くなると光Ｋｅｒｒ効果が生じ、パルス内部の位相が変化する。また、超短パルス光はそのスペクトルが広いので、媒質の２次の分散効果により位相速度と群速度に違いが生じ、パルス幅が変化する。これらのパルス広がり効果は、紫外においてより顕著である。ここでは、定量的にこれらの効果を考察する。

２．３－１　自己位相変調のしきい値

媒質の屈折率は光の電界をＥ（ｔ）として次のように表現出来る。

$$n(t) = n_0 + n_{2E}|E(t)|^2 \qquad (2-25)$$

ここで、n_0は光電界に依存しない線形屈折率、n_{2n}は非線形屈折率である。右辺第２項は電界の２乗すなわち光強度に比例する屈折率の変化

$$\Delta n(t) = n_{2I}\, I(t) \qquad (2-26)$$

を示し、光Ｋｅｒｒ効果と呼ばれる。光Ｋｅｒｒ効果が生じると光強度によって屈折率が変化するので、電界の位相が時間的に変調を受ける。屈折率変化はまた、空間的にも生じ、入射光強度に空間的分布があると光は光強度の高い方向に向かって屈折する。この空間的な光Ｋｅｒｒ効果は自己収束として良く知られる。自己収束が生ずると光強度分布の空間的揺らぎはさらに激しくなり、光学的ダメージの原因となるので、高出力の固体レーザーシステムでは特に注意が払われる。一方、ＫｒＦレーザーでは飽和フルーエンスが低く、増幅器は強く飽和し光強度分布は一様になるので、自己集束は大きな問題ではない。むしろ、次に述べる周波数変化が強く観測される。

レーザー光強度の時間変化がもたらす光の位相変化を自己位相変調（ＳＰＭ：Self Phase modulation ）と呼ぶ。ＳＰＭによる角周波数の変化Δωは

$$\Delta\omega(t) = -\frac{\partial}{\partial t}\Delta\phi(t) \qquad (2-27)$$

$$= -\frac{2\pi n_{2I}L}{\lambda}\frac{\partial I}{\partial t}$$

で与えられる。ここで、λは光の波長、Ｌは媒質の長さである。周波数変化は光強度の時間変化に比例するので、光強度が高く、また、パルス幅が短い程、周波数変化は大きい。さらに、周波数変化量は波長に反比例するので、紫外超短パルスレーザーではＳＰＭの効果が強く現れる。

光Ｋｅｒｒ効果の程度を評価する為に次式で示すＢ積分（Ｂ integral ）値がよく用いられる。

$$B \equiv \frac{2\pi}{\lambda}\int_0^L n_{2I}(t,z)\,I(t,z)\,dz \qquad (2-28)$$

Ｂ＝１ではＳＰＭにより周波数幅が√２倍に広がる。Ｂ値は自己収束による光強度分布が成長する利得に相当し、ＳＰＭや自己収束を防ぐには一般的にＢ＜３に抑えることが望ましいとされている。石英のn_{2I}は２．５×１０^{16}ｃｍ^2／Ｗ [20]であるから、Ｌ＝１０ｃｍとするとＢ＝１となる光強度I_{th}は

$$I_{th} = \frac{\lambda}{2\pi n_{2I}L} = 1.6\ (\mathrm{GW/cm^2}) \qquad (2-29)$$

である。増幅器列中のレーザー光フルーエンスは５ｍＪ／ｃｍ^{2}程度と低いが、パルス幅を１ｐｓとしても光強度は５ＧＷ／ｃｍ^{2}に達し、ＳＰＭは無視出来ない。

２．３－２　群速度分散による超短パルス増幅の限界

分散性媒質中の光の伝搬定数ｋ（ω）は中心周波数ω_0の伝搬定数k_0を$k_0=\omega_0/c$（ｃは光速）としたとき

$$k(\omega)=k_0+\frac{dk}{d\omega}(\omega-\omega_0)+\frac{1}{2}\frac{d^2k}{d\omega^2}(\omega-\omega_0)^2+\cdots \qquad (2-30)$$

で与えられる。右辺第２項がパルスの群速度、第３項が群速度分散（ Group Velocity　Dispersion ：ＧＶＤ）を表す。紫外ではＧＶＤは常に正であり、低い周波数成分が先行し高い周波数成分が遅れる。パルス幅は広がり、同時に周波数チャープを起こす。入力パルスがＳＰＭ等によりすでにチャープしている場合には、パルス広がりはさらに著しい。

ＧＶＤによるパルス広がりは入、出力パルス幅をそれぞれt_{in}，t_{out}とした時、

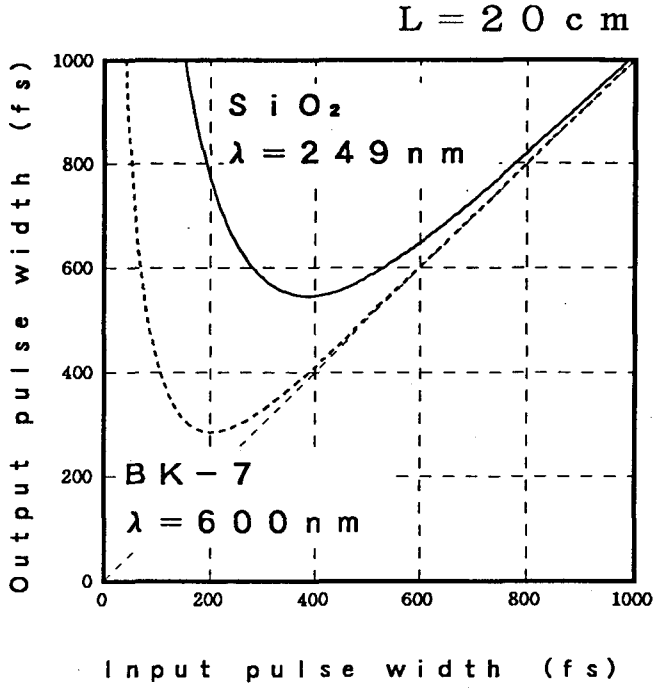
$$\frac{t_{out}}{t_{in}}=\left[1+\left(2\log 2\cdot D(\lambda)L/t_{in}^2\right)^2\right]^{1/2} \qquad (2-31)$$

で与えられる。ここでＤ（λ）は２次の屈折率分散を表し、

$$D(\lambda)=\lambda^3\frac{d^2n}{d\lambda^2}/\pi c^2 \qquad (2-32)$$

である。（２－３１）式はフーリエ限界パルスを仮定している。

Ｆｉｇ．２－８はＫｒＦレーザー波長及び可視光（６００ｎｍ）におけるＧＶＤの効果をＬ＝２０ｃｍの石英およびＢＫ７について計算したものである。紫外では５００ｆｓ以下のパルス幅ではＧＶＤの効果は無視出来なくなる。そして、４００ｆｓ以下では入力パルスを短くすると出力パルス幅は広がり、安定な伝播は不可能である。



Ｆｉｇ．２－８　群速度分散によるパルス広がり。
媒質の長さＬは２０ｃｍである。

２．３－３　可飽和色素と飽和増幅を用いたパルス圧縮法

以上のように紫外域における超短パルス増幅では、パルスはチャープし、かつ時間的に広がりを起こす。ガラスレーザー等の固体レーザーでは、自己収束の問題を避ける為にあらかじめチャープさせた長パルス光を増幅し、増幅後に負の分散素子（プリズム対等）を用いて圧縮する方法（Chirped Pulse Amplification : CPA）[21]が用いられる。しかしながら、種光のチャープの非線形性、非線形な群速度分散や増幅器の周波数特性により、圧縮後のパルスにはプリパルスや構造が生じることが多い。通常のストリークカメラや非線形相関法による測定では検出されない

１／１００程度の微小なプリパルスでも、ターゲット照射では先行プラズマを生成し大きな問題となる。また、圧縮したパルスをさらに飽和増幅すると、微小なサテライトパルスが小信号増幅されて高い光強度となり、実効的なパルス幅が広がることも報告されている[22]。ガラスレーザーにおいては、非線形チャープ部分をポッケルスセル等で取り除きプリパルスを抑制する等の対策を講じている。

本研究では、ＧＶＤやＳＰＭの影響を小さくするために入力パルス幅は１０ｐｓ程度に長くしておき、レーザー増幅器の利得飽和を利用し、増幅過程でパルス圧縮を行う方法を検討した。入力パルスは増幅器を通過する毎に圧縮されてゆく。レーザーパルス幅は最終段増幅器の出力を除いてピコ秒以上に保たれるのでＧＶＤやＳＰＭの影響を受け難い。特に強い圧縮効果を実現する為に「２重可飽和吸収体」による波形成形を行った。本パルス圧縮法の詳細は第４章で述べる。

２．４　外部パルス圧縮とその限界

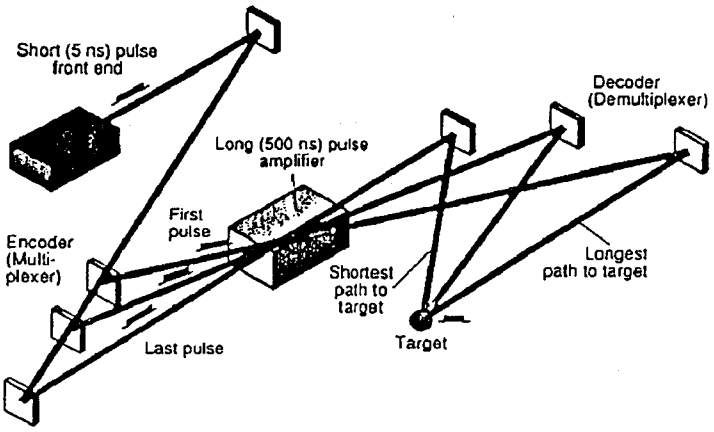
励起時間に比べＫｒＦエキシマの寿命は短いので、レーザー上準位のエネルギーを効率良く引き出す為には、励起時間中定常的に増幅器にレーザー光を注入し続ける必要がある。この条件が満たされれば増幅器の利得は飽和により低く抑えられ、引き出し効率は高く、同時にＡＳＥや寄生発振も発生しにくい。

しかし、単一の短パルス光でエネルギー引き出しを行うと、引き出し可能なエネルギーは励起時間をτ_p、エキシマの実効寿命をτ_{eff}として、定常増幅のτ_{eff}/τ_p倍に減少する。例えば、τ_p＝１００ｎｓ、τ_{eff}＝１．５ｎｓの時には、定常増幅のおよそ１．５％のエネルギーしか取り出すことが出来ない。短パルスかつ高エネルギーを得るためにはこの時間的引き出し効率を改善する必要がある。これには増幅後パルスを圧縮する外部パルス圧縮法が良い。

ＣＰＡ法ではパルス圧縮を分散素子に依存しているので、その遅延時間は数ナノ秒以下に制限される。以下、エキシマレーザー用として用いられるパルス圧縮法について検討する。

２．４－１　パルススタッキング法

およそτ_{eff}の間隔からなるパルス列を増幅器に注入し続ければ、利得の平均値は低く保たれ、同時に定常増幅に匹敵するエネルギーを引き出せる。角度多重増幅法（ angular　multi−plexing ）とはこの原理を応用し、個々のパルスにわずかな角度を設けて増幅器に注入し、増幅後にパルス間の時間遅れを光学的に補正して高出力単一パルスを得る方法である。概念図をＦｉｇ．２－９に示す。



Ｆｉｇ．２－９　パルススタック法。
各ビームは時間差を持ち、角度多重で増幅器に入力される。

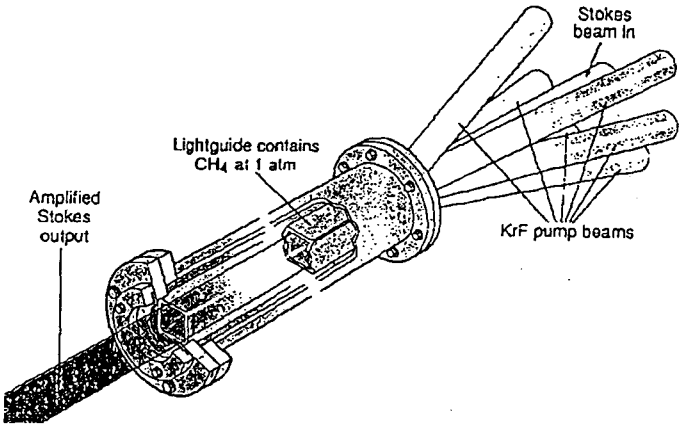
原理的には何等問題がなくしばしば用いられる。しかし、励起時間に比例してビーム数、光学素子の数が増加しコスト的な問題[23]があること、また、超短パルス光では同時照射に高い時間的精度が必要になるなど実用上の問題が多い。また、先行パルスの回折光や散乱光が他のビーム伝播路に漏洩すると、プリパルスを発生させることもある。この光学的クロストークは増幅器利得の大きなＫｒＦレーザーシステムではしばしば問題となる。

これらの理由から、次に述べる誘導散乱法の補助的手段として使われることが多い。

２．４－２　ラマンビーム収束法

非線形誘導散乱（誘導ラマン散乱）を用いて複数の励起光ビームを１つのストークスパルスに収束する方法である。Ｆｉｇ．２－１０に示すようにライトガイドによって励起を行う。出力されるストークス光の空間的品質（ビーム広がり角や一様性）や時間的波形は、種となるストークス光に依存し励起光の影響を受けにくいので、高品質のパルスを得ることが出来る。

英国ラザフォード研究所のＳｈａｗ等[24]はＫｒＦ増幅器と前方ラマン増幅の両方においてパルススタックを行いＡＳＥのない超短パルス光を発生させている。２段のパルススタックを行っているので、ビーム数の２乗の圧縮率を得ることが出来る。しかし、それでもなお多くの光学素子を必要とすることやビーム間の正確な同期が必要であるなど、パルススタック法の問題点が残されている。



Ｆｉｇ．２－１０　ラマンビーム集束法。
多数の励起パルスはライトガイド内部で誘導ラマン散乱により１つのストークスパルスに収束される。

２．４－３　後方誘導散乱

ＫｒＦレーザー光を励起光として、後方誘導散乱（後方誘導ラマン散乱、後方誘導ブリュアン散乱）によって短パルスストークス光を増幅する方法である。導波路を用いて励起すれば、高い空間的・時間的品質を持ったストークスパルスの発生が出来る。後方誘導散乱を用いた圧縮法では励起光のビーム数は１本で済むので光学的配置は非常に簡単である。しかし、超短パルスレーザーへの応用にはいくつかの物理的問題がある。

誘導ブリュアン散乱は前方散乱利得を持たないので、後方ラマン圧縮で問題となる２次ストークス光発生の問題がない。しかし、誘導ブリュアン散乱の利得・利得幅積は紫外域ではラマン散乱よりも小さく[25]、超短パルス増幅に適さない。

一方、後方誘導ラマンパルス圧縮法では、後方１次ストークス光と共に伝播する後方２次ストークス光が発生し、１次ストークス光のエネルギーを奪い圧縮器の効率を制限する。[26] ２次ストークス光低減の為に励起周波数をチャープ[27]させたり、２次ストークス波長に対して吸収損失を与える等の方法が考案されたが、根本的な解決法は見つかっていない。圧縮率を励起光強度と後方１次ストークス光強度の比率で定義した場合、２次ストークス光発生によって制限される圧縮率の上限は５程度であって、ナノ秒レーザー光を超短パルス光に圧縮することは不可能である。

本研究では、後方１次ストークスパルス幅をラマン媒質の位相緩和時間以下することにより、分子振動を後方２次ストークス光のみに対してのみ過渡状態に出来ることを示した。この新しい方法により励起光強度の１５０倍に相当するストークス光強度を得ることが出来た。本方式の詳細は第５章で述べる。

２．５　紫外超短パルス光の測定

超短パルス光を正確に測定することはその発生と並んで重要な問題である。今日、高速のフォトダイオードやオシロスコープが開発されているが、それでもなお、短パルスレーザー光の測定には困難が伴う。サブピコ秒分解能をもつストリークカメ

ラ[28]も開発されているが、その最高分解能は４０光子程度の微弱光に対してのみ保証されており、Ｓ／Ｎが確保出来る強い光強度では空間電荷の影響により時間分解能が低下する。さらに、紫外域では光陰極から発する初期電子の速度の広がりが大きく分解能はさらに悪くなる。

非線形相関法[29]ではフェムト秒領域のパルス幅や位相構造を正確に測定することが可能で、標準的な超短パルス光測定手段である。非線形相関法として

①第２高調波（ＳＨＧ）法

②第３高調波（ＴＨＧ）法

③多光子蛍光法

④光Ｋｅｒｒ効果法

⑤光電流法

⑥多光子吸収法（吸収量測定）

等が挙げられる。中でも、①のＳＨＧ法は超短パルス光計測に最も広く用いられ、また、時間分解能も高い。最短パルス６ｆｓもこの方法により測定されている。しかし、紫外域ではＳＨＧ光を発生できる非線形光学結晶がないので、希ガスを非線形媒質として②のＴＨＧ法[30]を用いることもある。気体を用いるので分散が小さい利点があるが、発生するＴＨＧ光が真空紫外となりその検出は容易でない。一般には、③の多光子蛍光法[31]や⑤の光電流法[32]が用いられる。固体中の電子電流や気体中のイオン電流を用いる光電流法は、比較的広い波長範囲で用いることが出来るが、シングルショット計測には適さない。一方、多光子蛍光法では、蛍光の発生効率が低い上に蛍光は空間的に一様に放出されるので、測定感度が低い。これまで幾つかの多光子蛍光法が提案されたが、シングルショット計測には数１００ＧＷ／ｃｍ^{2}の高い励起光強度が必要[33]とされ、たとえ気体の非線形媒質を用いてもＳＰＭの効果を無視できない。さらに、蛍光材料に用いたハロゲン化アルカリ結晶等に色中心を生じ、実用になっていない。⑥の多光子吸収法[34]も感度が低く、多光子蛍光法と同様の問題を抱えている。

本研究では２光子吸収によって生ずる超音波を検出して、非線形自己相関関数を得る紫外超短パルス計測法を開発した。この装置はシングルショットで計測可能で、繰り返し速度の遅いＫｒＦレーザーシステムのモニター用いることができる。本方

法は多光子蛍光法に比べて約２桁高い測定感度が得られるのでＳＰＭを生じ難い。さらに、蛍光発生効率等の考慮が不要になるので、非線形媒質選択の自由度が非常に高い。光化学的に安定な媒質を選択できることはもちろん、赤外から真空紫外に及ぶ幅広い波長範囲の測定に応用可能である。第６章において本自己相関計の詳細を述べる。

２．６　紫外光学素子の吸収機構とレーザー損傷

高出力レーザーでは、レーザー損傷の問題から光学素子の口径は大型化するが、基板の研磨精度や蒸着の一様性等の技術制約から自ずと限界がある。同時に、大型化は非線形な製造コストの増加につながる。耐力向上はレーザーの高出力化、小型化、経済性の各面で強く求められる。

損傷機構はレーザーの波長、そしてパルス幅によって異なる。高出力の連続発振レーザー（ＣＷ）では、光加熱と熱伝導の比で決まる温度上昇が損傷原因となる。パルスレーザーになると熱伝導が無視できるようになって、吸収が損傷しきい値を決める。さらに、パルス幅が短くなって光強度が増加すると非線形な吸収機構が損傷の原因となる。とりわけ、高輝度紫外光はターゲットのみならず光学素子とも強く相互作用し、損傷を与え易い。損傷要因となる吸収を定量的に評価し、損傷機構を明確にすることが高耐力化にとって最も重要な課題となる。

それにも拘らず、光学素子の評価はこれまで損傷後の観測がほとんどであった。その評価も、多数の素子を壊し、その統計処理によって損傷機構を推測することが唯一の手段であった。超短パルス紫外レーザーに至っては、しきい値測定例も皆無である。

２．６－１　紫外光学薄膜とその損傷機構

光学薄膜の詳細な物性は未だに未知の分野が多い。光学薄膜は多くの不完全な結晶の集合体であって、単結晶とは大きく異なる物性を示す。通常紫外光に対して完全に透明に思われる石英やアルカリ結晶も、薄膜状態では１０００倍近い大きな吸

収を示すこともある。[35] この吸収の原因は格子欠陥による色中心あるいは励起子等と考えられているが、未だ明確ではない。高耐力ミラーの開発には材料そのものの本質的な吸収評価に加えて、蒸着過程を含んだ薄膜状態での光学材料の評価[36]が不可欠である。

紫外特有の問題として、光子エネルギーが光学材料のバンドギャップに非常に近いことが挙げられる。ＫｒＦレーザーではあらゆる光学材料のバンドギャップを３光子以内エネルギーで超える。一部のフッ化物を除き２光子以内であって、多光子吸収は不可避である。[37][38]

加えて、高電界強度下では吸収によって生じた自由電子がレーザー電界によって加速され、衝突電離を繰り返す電子雪崩[39]が損傷機構と考えられる。

これら多光子吸収や電子雪崩はレーザー光強度に対して非線形な吸収過程であり、高出力レーザー損傷の主な原因である。にもかかわらず、光学薄膜中でこれらの損傷を直接観測した報告例はないのが現状である。

２．６－２　吸収の評価

高出力エキシマレーザーには主に誘電体多層膜鏡が用いられる。屈折率の異なる２種の光学材料を４分の１波長の厚さで交互に重ね、多重干渉を用いて反射鏡を構成する。

光学薄膜の吸収測定が難しいのは、吸収長が非常に短いことにある。誘電体多層膜は通常λ／４膜２０層から１００層程度であるから、吸収長は１０μｍに満たない。全反射鏡では反射によって多層膜内の光強度は急速に減衰するので、実効的な吸収長は１μｍ程度である。

光学素子の吸収は入射光強度に対して透過あるいは反射光強度を測定して評価されるのが通常である。しかし、このような評価では、吸収量が微小な場合、相対的に僅かな入出力光強度の測定誤差が非常に大きな絶対的吸収量の誤差となって現れる。全反射鏡の評価法として、２枚のミラーを組み合わせてそれらの間の多重反射を用る方法もあるが、高耐力鏡に主に用いられる真空蒸着膜では、吸収量を上回る散乱損失があり、散乱と吸収量の区別が出来ない。

本研究では、吸収によって生じた熱膨張を音響的に測定する光音響法を用いた。光音響信号は蛍光と相補的な関係にある。通常の光学材料の吸収量に対する蛍光の発生量は微小であるので、光音響法は原理的に非常に高い感度を示す。光音響信号は直接吸収量に比例し、微小吸収の高感度測定に適する。また、蛍光法のように励起準位と発光に関与する準位の関係によって測定感度が異なることもなく、多光子吸収の評価にも好都合である。

さらに、光電流法を用いて、吸収、あるいは衝突電離により生ずる自由電子の時間発展を直接測定し、電子雪崩損傷の直接かつ定量的な評価を初めて行った。これら吸収測定法については第８章で詳しく述べる。

２．７　むすび

ＫｒＦエキシマの性質、光伝播、パルス計測、および光学素子を紫外超短パルスレーザー開発の観点から考察してその問題点を指摘し、開発すべき技術課題を明かにした。

[1] ナノ秒増幅で主に効率を制限するレーザー媒質の吸収は、短パルス光増幅では問題とならい。一方、レーザーとＡＳＥのコントラスト比の劣化を避けるには増幅器の小信号動作が必須であり、引き出し効率を著しく制限する。高出力化にはＡＳＥの抑制が不可避である。

[2] 自己位相変調のしきい値は１ＧＷ／ｃｍ^{2}のオーダーにあり、群速度分散により制限されるパルス幅の下限は５００ｆｓである。このため、サブピコ秒増幅ではチャープは不可避であり、パルス圧縮法を併用したシステム構成が必要である。

[3] エキシマ生成時間は実効的上準位寿命よりも長い。上準位エネルギーの効率的利用には、励起時間に相当する時間遅延を備える外部パルス圧縮器が必要である。

[4] 紫外域では多光子蛍光法がパルス幅測定手段として用いられている。しかし、測定感度が不十分であって、自己位相変調によるチャープや非線形媒質の劣化をもたらす。高感度なパルス幅測定手段が必要である。

[5] 紫外域では、多光子吸収を初めとする非線形吸収が生じ易い。特に、超短パルスレーザーでは光強度が極端に高く、その効果は著しい。にもかかわらず、これらの吸収観測例は皆無に近い。非線形吸収計測法の開発が紫外レーザー光学素子の評価手段として必要である。

参考文献

[1] J.J.Ewing and C.A.Brau:Appl.Phys.Lett.,vol.27,pp.350−352(1975).

[2] M.Ronki, J.A.Mangano, J.H.Jacob, and J.C.Hsia:IEEE QE,vol.QE−14,pp.464−481(1978).

[3] D.J.Bradley and G.H.C.New:Proc. of IEEE,vol.62,pp.313−345(1974).

[4] R.S.Taylor, P.B.Corkum, S.Watanabe, K.E.Leopold, and A.J.Alcock: IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−19,pp.416−425(1983).

[5] M.J.Shaw, F.O'Neill, C.B.Edwards, D.J.Nicholas, and D.Craddock: Appl.Phys.B,vol.B28,127(1981).

[6] J.K.Rice, G.C.Tisone, and E.L.Patterson: IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−16,pp.1315−1326(1980).

[7] J.C.Swingle, L.G.Schlitt, W.R.Rapoport, J.Goldhar, and J.J.Ewing: J.Appl.Phys.,vol.52,pp.91−96(1981).

[8] F.Kannari, M.J.Shaw, and F.O'Neell:J.Appl.Phys.,vol.61,pp.476−488(1987).

[9] E.M.Garmire and A.Yariv:IEEE J. Quantum Electron., Vol.QE−3,pp.222−226(1967).

[10] M.Watanabe, A.Endoh, and S.Watanabe:Appl.Phys.B,vol.B41,pp.49−52(1986).

[11] S.Szatmari, and F.P.Schafer:Appl.Phys.B,vol.B46,pp.305−11(1988).

[12] 西岡　一、佐々木明、倉嶋利雄、倉西英明、植田憲一、宅間　宏、糟谷紘一：レーザー研究 ,vol.16,pp.571−581(1988).

[13] V.H.Shui:Appl.Phys.Lett.vol.36,135(1980).

[14] H.Nishioka, T.Kurashima, K.Ueda, and H.Takuma:"Short Wavelegth Lasers" ed. by C.Yamanaka,Springer Proc. in Phys.,vol.30,pp.208−214(1988).

[15] K.Hakuta, H.Komori, N.Mukai, and H.Takuma:J.Appl.Phys.,vol.61,pp.2113−2117(1987).

[16] L.M.Frantz and J.S.Nodvik:J.Appl.Phys.,2246−2349(1963).

[17] S.Szatmari and F.P.Schafer:J.Opt.Soc.Am.B,vol.4,pp.1946−1948(1987).

[18] W.E.K.Gibbs:Appl.Phys.Lett.,vol.11,pp.113−115(1967).

[19] I.J.Bigio and S.J.Thomas:Appl.Phys.Lett.,vol.49(1986).

[20] W.T.White, W.L.Smith and D.Milam:Opt.Lett.,9,10−12(1984).

[21] A.Sullivan, H.Hamster, H.C.Kapteyn, S.Gordon, W.White, H.Nathel, R.J.Blair,

and W.Falcone:Opt.Lett.,vol.16,pp.1406−08(1991).

22) S.Szatmari, G.Kuhnle, J.Jasny, and F.P.Schafer:Appl.Phys.B,vol.B49,pp.239−44(1989).

23) L.A.Rosocha, P.S.Bowling, M.D.Burrows, M.Kang, J.Hanlon, J.Mcleod and G.W.York:Laser and Particle Beams,vol.4,pp.55−70(1986).

24) M.J.Shaw:Laser and Part.Beams,vol.9,pp.309−328(1991).

25) I.V.Tomov, R.Fdedosejevs, and D.C.D.Mcken:Opt.Lett.,vol.9,pp.405−407(1984).

26) J.R.Murray, J.Goldhar, D.Eimerl, and A.Szoke: IEEE J.Quantm Eletron.,vol.QE−15,pp.342−368(1979).

27) J.A.Caird:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−16,pp.489−496(1980).

28) 土屋　裕：レーザー研究,vol.15,pp.896−904(1987).

29) D.J.Bradley and G.H.C.New:Proc.of THE IEEE,vol.62,pp.313−345(1974).

30) K.Miyazaki and H.Sakai:to be published.

31) N.Sarukura, M.Watanabe, A.Endoh, and S.Watanabe:Opt.Lett.,vol.13,pp.996−998(1988).

32) S.Szatmari and F.P.Schafer:Opt.Comm.,vol.48,pp.279−283(1983).

33) P.Simon, H.Gerhardt, S.Szatmari:Meas.Sci.Technol.,vol.1,pp.637−9(1990)

34) J.I.Dadap, G.B.Focht, D.H.Reitze, and M.C.Downer:Opt.Lett.,vol.16,pp.499−501(1991).

35) 植田憲一、萩原真一、北谷文人、宅間　宏：レーザー研究,vol.15,pp.22−31.(1987).

36) K.Ueda:Laser and Particle Beams,vol.7,pp.375−382(1989).

37) I.M.Catalano, A.Cingolani, and A.Minafra:Phys.Rev.B,vol.5,pp.1629−1632(1972).

38) T.Tomie, I.Okuda, and M.Yano:Appl.Phys.Lett.,vol.55,pp.325−327(1989).

39) N.Bloembergen:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−10(1974).

第３章　ＫｒＦレーザー用可飽和吸収体の開発

可飽和吸収体がＫｒＦレーザーのＡＳＥ抑制に対して有効であることは前章で述べた。本章では、初めにＫｒＦレーザーに適した可飽和吸収体を調べ、次にその基礎特性を明らかにする。さらに、短パルスＫｒＦレーザーに用いてＡＳＥ抑制効果を示す。

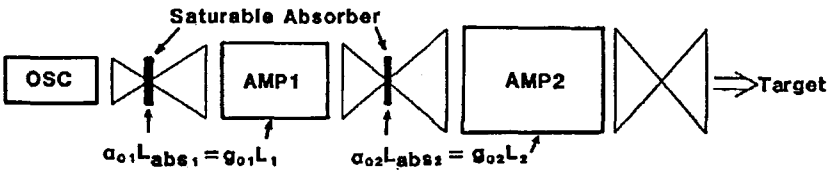
３．１　ＫｒＦレーザー用可飽和吸収体の条件

可飽和吸収体に望まれる理想的な特性は、レーザー光に損失を与えず十分低いエネルギーで飽和し、飽和時の透過率が１００％に近いことである。しかし、現実の可飽和吸収体を超短パルスレーザーに適用すると、飽和に必要なエネルギーを満たすために非常に高い光強度が必要になり、多光子吸収や光Ｋｅｒｒ効果が問題になる。さらに紫外域では、残留吸収を生じ、透過率は一般に可視、赤外に比べ著しく低い。

本節では、超短パルスＫｒＦレーザーに用いる可飽和吸収体が満たすべき条件を考察する。

３．１－１　吸収断面積

可飽和吸収体は実用的な光強度で透明になる必要がある。初めに、この条件を考察する。



Ｆｉｇ．３－１　ＡＳＥ零利得増幅システムの概念。

ＡＳＥを抑制するに、増幅器の前にその増幅利得に等しい吸収を持つ可飽和吸収体を挿入し、ＡＳＥに対して零利得の増幅器列を構成する。このＡＳＥ零利得システムの概念図をＦｉｇ．３－１に示す。

ＡＳＥは小信号利得g_0Lで増幅を受けるので、可飽和吸収体に必要な小信号吸収α_0Lは、

$$\alpha_0 L_a = g_0 L \qquad (3-1)$$

である。ここで、α_0は可飽和吸収体の小信号吸収係数、Ｌ、L_aは増幅器の利得長および可飽和吸収体の吸収長である。

飽和に必要な吸収エネルギーE_bは、可飽和吸収体の飽和フルーエンスをE_{sa}とすると

$$E_b = \alpha_0 E_{sa} L_a \qquad (3-2)$$

で与えられる。（３－１）式の零利得条件より、$E_b = g_0 L E_{sa}$である。通常ＫｒＦレーザー増幅器の小信号利得g_0Lは５から１０程度であるから、必要なE_bはE_{sa}の１０倍程度である。

照射可能な光強度の上限は、光Ｋｅｒｒ効果による自己集束や自己位相変調および多光子吸収によって制限される。今、これらのしきい光強度I_{th}を１０ＧＷ／ｃｍ^2、レーザーパルス幅T_pを１ｐｓと考えると、E_{sa}の上限は$\alpha_0 L_a = 10$の時、

$$E_{sa} = \frac{E_b}{\alpha_0 L_a} = \frac{I_{th} T_p}{\alpha_0 L_a} \qquad (3-3)$$

$$= \frac{10 \times 10^9 \times 1 \times 10^{-12}}{10} = 1\,\mathrm{mJ/cm^2}$$

である。この飽和フルーエンスを与える吸収断面積σ_aは

$$\sigma_a = \frac{h\nu}{E_{sa}} = \frac{5\times1.6\times10^{-19}}{1\times10^{-3}} = 8\times10^{-16}\ cm^2 \qquad (3-4)$$

である。σ_aは光子エネルギー$h\nu$に比例するので、紫外可飽和吸収体には赤外や可視域に比べさらに大きな吸収断面積が求められる。（３－３）式あるいは（３－４）式はレーザー増幅器中におけるＡＳＥを抑制し、レーザーパルスを増幅する為の基本的条件である。

必要な吸収断面積σ_a～$8\times10^{16}\ cm^2$は、可視域のモード同期色素レーザーに用いられる可飽和色素の中でも特に大きな吸収断面積を持つＤＯＤＣＩやＨＤＩＴＣＩに相当する極めて大きな値である。

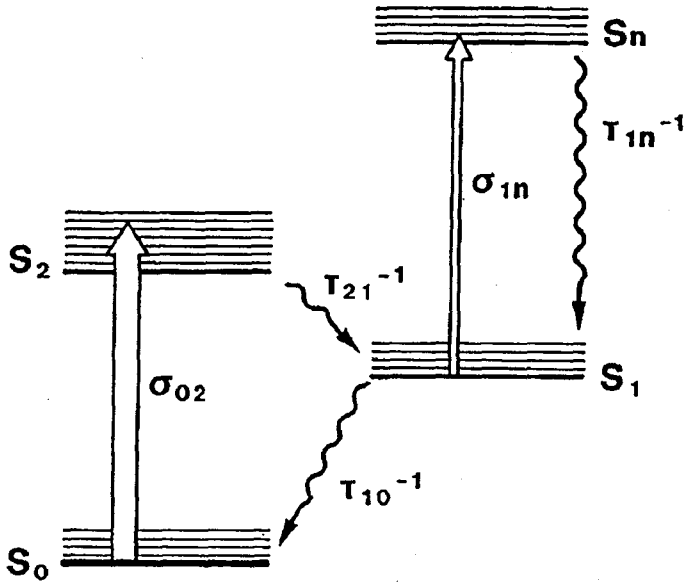
３．１－２　残留吸収

紫外域において幾つかの有機色素は$10^{-16}\ cm^2$オーダーの吸収断面積を持つが、これら色素は飽和しても完全に透明にならず、レーザー光エネルギーの損失が無視出来ない。有機化合物の一般的なエネルギー構造[1]をＦｉｇ．３－２に示す。図中でS_0、S_1、S_2は１重項基底状態、第１、第２励起状態を示している。第３以上の高励起状態では、分子の振動、回転準位は密に重なりあっており連続的な吸収を示すので、図中ではS_nの一つの準位によって示す。

ここで、$S_0 \rightarrow S_2$の吸収が紫外における可飽和吸収である。S_2に励起された分子は、急速にS_1に緩和する。しかし、ここでさらにS_1からS_nへの吸収を生ずる。この吸収は非飽和であり、可飽和色素の性能を制限する。この吸収を励起状態吸収（ Excited State Absorption ：ＥＳＡ）[2)3)4)5)]と呼ぶ。

以下、色素の緩和過程をさらに詳しく考察する。S_1の寿命は最も長く数１００ｐｓから１０ｎｓ程度で、$S_1 \rightarrow S_0$の遷移は通常最も強い発光を伴う。一般の色素レーザーの発振はこの遷移によっている。一方、S_2以上の高励起状態の緩和過程はほとんど無輻射で、その寿命は１ｐｓあるいはそれ以下である。励起光がピコ秒あるいはフェムト秒領域のレーザーならば、S_1の寿命はレーザーパルス幅より

も長いので、十分な光エネルギーを与えればＳ０に存在する分子は枯渇し、吸収飽和が生ずる。高励起状態の寿命はレーザーパルス幅よりも短く、ＥＳＡは非飽和である。有機色素を紫外可飽和吸収体として用いる場合、この非飽和残留吸収を小さく抑えることが重要である。



Ｆｉｇ．３－２　有機化合物のエネルギー構造。
Ｓ１→Ｓｎの吸収が非飽和吸収である。

残留吸収を定量評価する為にＳ０→Ｓ２の吸収断面積σ_{02}とＳ１→Ｓｎ間の吸収断面積σ_{1n}の比Γを

$$\Gamma \equiv \frac{\sigma_{02}}{\sigma_{1n}} \qquad (3-5)$$

と定義する。Γが大きい程、残留吸収が小さく優秀な可飽和色素である。Γ値と色素の小信号透過率Ｔ０、残留吸収によって決まる最大透過率Ｔｅの関係は

$$\Gamma = \frac{\sigma_{02} N L_a}{\sigma_{in} N L_a} = \frac{Log(T_0)}{Log(T_e)} \qquad (3-6)$$

で与えれる。ここでNは分子の密度である。

次に可飽和色素の飽和特性について考察する。分子1個が吸収遷移するのに必要な光子数を光エネルギー密度で表したものを飽和フルーエンスE_{sa}と呼ぶ。吸収上準位S2の緩和が速く、S2からの誘導放出が無視出来る場合、E_{sa}はσ_{02}を用いて

$$E_{sa} \equiv \frac{h\nu}{\sigma_{02}} \qquad (3-7)$$

と定義する。一方、上準位の緩和が遅く無視できる時は

$$E_{sa} = \frac{1}{2}\frac{h\nu}{\sigma_{02}} \qquad (3-8)$$

で表される。すでに述べたようにS2の緩和時間は短いので、一般には（3－7）式を適用する。

上記モデルを用いて入力エネルギーEの単位長あたりの変化すなわち吸収エネルギーを表すと

$$\frac{dE}{dz} = -N_0\,\sigma_{02}\,E_{sa}\left[1-\exp\left(-\frac{E}{E_{sa}}\right)\right]$$

$$-N_1\,\sigma_{1n}\,E\left[1-\exp\left(-\frac{E}{E_{sa}}\right)\right] \qquad (3-9)$$

のようにS0－S2間の可飽和吸収とS1－Sn間の残留吸収の和として記述出来る。ここで、N0、N1はS0、S1の分子数密度である。Γ値を用いて

（３－９）式を変形すれば

$$\frac{dE}{dz} = -N_0\ \sigma_{02}\ E_{sa}\left(1+\frac{\sigma_{1n}}{\sigma_{02}}\frac{E}{E_{sa}}\right)\left[1-\exp\left(-\frac{E}{E_{sa}}\right)\right] \qquad (3-10)$$

さらに小信号吸収係数$\alpha_0 = N_0\sigma_{02}$を用いて

$$\frac{dE}{dz} = -\alpha_0\ E_{sa}\left(1+\frac{1}{\Gamma}\frac{E}{E_{sa}}\right)\left[1-\exp\left(-\frac{E}{E_{sa}}\right)\right] \qquad (3-11)$$

となる。

（３－１１）式を用いれば、E_{sa}、Γをパラメータとして可飽和色素の飽和特性を評価出来る。

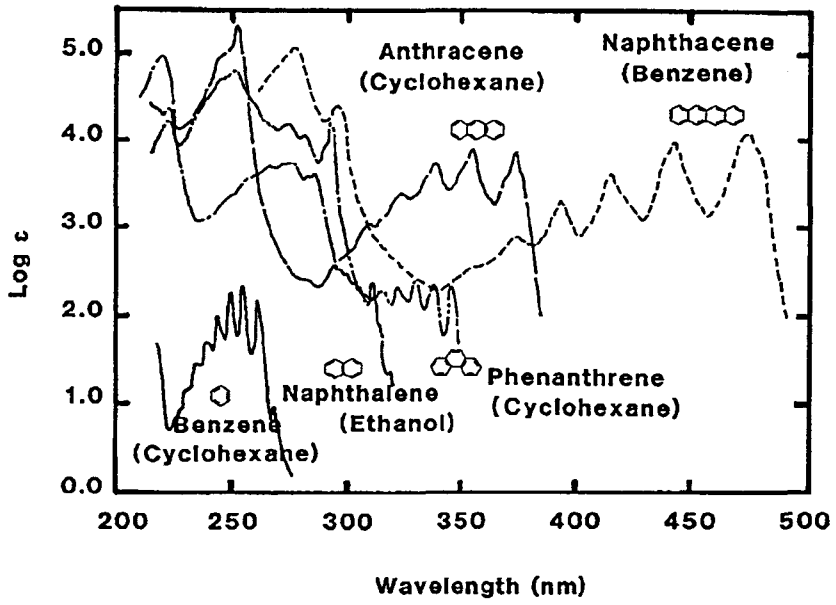
３．１－３　吸収媒質の選択

優れた飽和特性を得るには、基底状態と励起状態の吸収断面積の比Γを出来る限り大きくすることが望まれる。ＥＳＡは基底状態からの吸収とほぼ同じ波長域に吸収帯を持ち、一般的にはそのスペクトル幅は基底状態よりも広いことが知られている[6]。故に使用レーザー波長と基底状態からの吸収ピークを一致させることが、最大のΓ値を持った色素を選択する一つの方法となる。

色素レーザー等の波長可変レーザーでは、レーザー波長を吸収断面積が最大となる波長に一致させて可飽和色素を使用することができる。しかし、波長の固定されたＫｒＦレーザーでは利得スペクトルに完全に一致した吸収スペクトルを持つ媒質が必要であるため、色素の調査・選択は容易でない。多くの有機色素の吸収ピークを調べ、分子構造と吸収波長の関係を見いだす方法によって選択を行った。特に、３．１で述べた吸収断面積を満足し、かつ吸収ピークがＫｒＦレーザー発振波長（２４８．５ｎｍ）に近い色素群を候補とした。

芳香族の吸収スペクトルをＦｉｇ．３－３に示す。縦軸はモル吸光度εの常用対

数である。単環のベンゼンはＫｒＦレーザー発振波長に吸収を持つが、これはＳ０－Ｓ１の吸収であり、また、吸収断面積も小さい。環が一つ付加されるとスペクトルは広がり、吸収断面積が最大となる波長は１００ｎｍ長波長に移動する。直線上に多環が並ぶ芳香族（線形芳香族）では吸収スペクトルの形に変化がほとんど見られないままスペクトルの幅は長波長側に広がり、短波長側にＳ０－Ｓ２吸収が現れる。アントラセンに代表される三環芳香族はＫｒＦレーザー発振波長に強いＳ０－Ｓ２吸収帯を持っている。線形多環族のＳ０－Ｓ２吸収ピークにおける吸収断面積は10^{-16}ｃｍオーダーで必要な吸収断面積に近い。アントラセンの吸収ピーク波長は、ＫｒＦレーザー発振波長（２４８．５ｎｍ）に比べ、長波長側（２５２ｎｍ：シクロヘキサン中）であったので、その誘導体や類似の分子構造を持つ色素も含めて分光特性を測定した。



Ｆｉｇ．３－３　芳香族の吸収スペクトル。
（　）内は溶媒を示す。
線形三環芳香族はＫｒＦレーザー
発振波長に強い吸収を持つ。

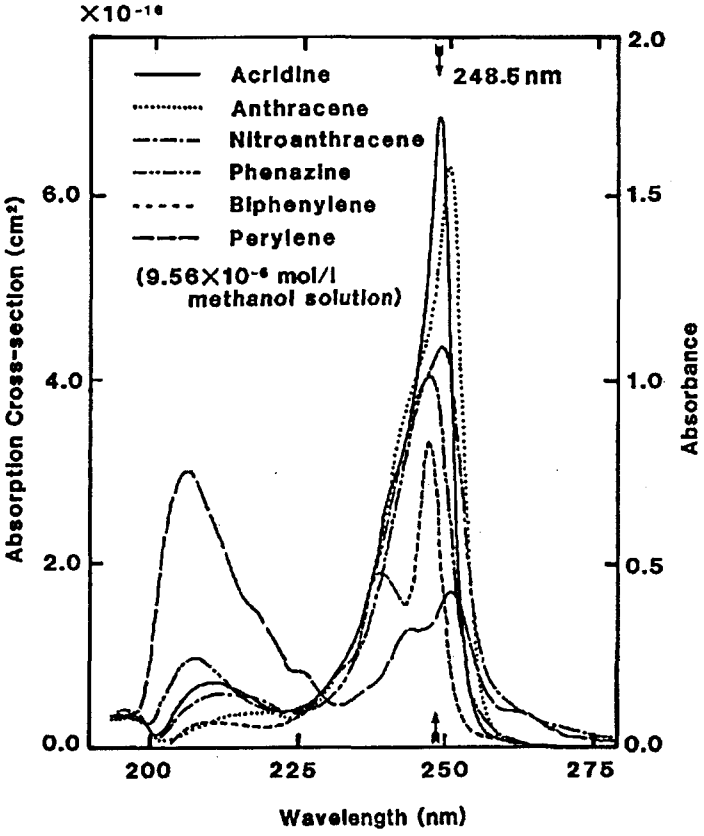
試験した色素名と分子式を下記に示す。これらの色素はＫｒＦレーザー波長付近こ10^{-16} cm^2以上の大きな吸収断面積を持つ。

①	アクリジン	$C_{13}H_9N$
②	アントラセン	$C_{14}H_{10}$
③	フェナジン	$C_{12}H_8N_2$
④	ビフェニレン	$C_{12}H_8$
⑤	ニトロアントラセン	$C_{14}H_9O_2N$
⑥	ペリレン	$C_{20}H_{12}$

３．２　可飽和色素の特性測定

３．２－１　吸収スペクトルと吸収断面積

上記の６種の色素について、可視・紫外分光高度計を用いて吸収スペクトルと吸収断面積の測定を行った。色素の共鳴周波数は溶媒の屈折率や誘電率に大きく依存するので、測定は全てメタノール溶液で行った。測定は可視紫外分光高度計（日立２００－１０型）により２００ｎｍから３７０ｎｍの範囲で行った。溶媒の濃度は９．５６×１０$^{-6}$ｍｏｌ／ｌ、吸収長Ｌａは１ｃｍである。

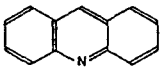
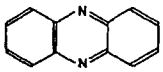
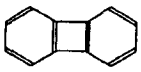
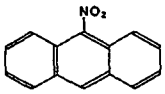
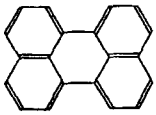


Ｆｉｇ．３－４　ＫｒＦレーザー波長における吸収断面積の比較。

ＫｒＦレーザー波長付近の吸収スペクトルをＦｉｇ．３－４に、分子構造・レーザー波長における吸収断面積をＴａｂｌｅ ３－１に示す。

含窒素系の線形３環芳香族アクリジンの吸収断面積は$\sigma_a = 6.8 \times 10^{-16}$ cm^2であり、上記色素中最も大きいことが明らかになった。吸収断面積の半値全幅は８ｎｍで、ＫｒＦエキシマの利得帯域幅３ｎｍよりも十分広く、ＡＳＥの全てを吸収出来る。同時に、増幅し得る最も短いパルスに対しても十分な時間応答が期待出来る。

Ｔａｂｌｅ ３－１ 誘起色素の分子構造および吸収断面積。[1)]

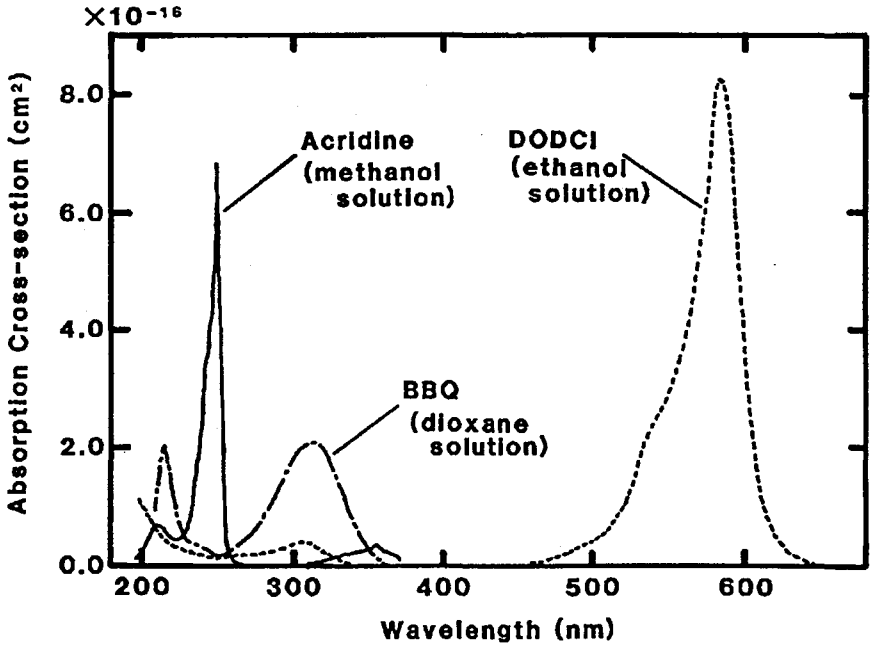
Medium	Structure	Absorption Cross-section (cm^2) and Solvent Peak (Wavelength) from reference	 λ=248.5 (nm) this work
Acridine $C_{13}H_9N$		6.8×10^{-16}(250nm) Water	6.8×10^{-16} Methanol
Phenazine $C_{12}H_8N_2$		5.1×10^{-16} (248nm) Cyclohexane	4.4×10^{-16} Methanol
Biphenylene $C_{12}H_8$		3.8×10^{-16} (248nm) Cyclohexane	2.6×10^{-16} Methanol
Nitroanthracene $C_{14}H_9O_2N$		5.8×10^{-16} (250nm) Methanol	4.2×10^{-16} Methanol
Perylene $C_{20}H_{12}$		2.0×10^{-16} (251nm) Methanol+Ethanol	1.4×10^{-16} Methanol

他のレーザーで用いられている可飽和色素（ＢＢＱ、ＤＯＤＣＩ）[7)]とアクリジンの比較をＦｉｇ．３－５に示す。吸収断面積はＸｅＣｌレーザー用の可飽和色素ＢＢＱよりも３倍大きく、Ｒｈ６Ｇレーザー用として用いられる最も優秀な可飽和色素ＤＯＤＣＩに匹敵する。

次に、吸収スペクトルの溶媒効果を測定した。用いた溶媒はエタノール、水、エ

チレングリコールである。吸収スペクトルをＴａｂｌｅ　３－２に示す。吸収断面積のピーク値は溶媒に依存せず、ピーク波長が溶媒により変化を示した。メタノール溶液はＫｒＦレーザー発振波長に最も近い吸収スペクトルを示し、レーザー発振波長における吸収断面積は最も大きい。なお、アクリジンは水に難溶であったので体積比１０％のメタノールを混合し溶解を促進したが、放置すると析出が観測されたため、水溶液の正確な濃度、吸収断面積は不明である。

アクリジンメタノール溶液の吸収断面積σ_{02}＝６．８×１０$^{-16}$ｃｍ^{2}から見積もられる飽和フルーエンスは（３－７）式よりE_{sa}＝１．２ｍＪ／ｃｍ^{2}である。この飽和フルーエンスは３．１－１で検討したＡＳＥ零利得条件における吸収飽和を可能にする値であり、アクリジンメタノール溶液の有効性が推測される。以下、短パルスレーザー光を照射し、吸収飽和特性を実測した。



Ｆｉｇ．３－５　ＢＢＱ，ＤＯＤＣＩとアクリジンの吸収断面積の比較。

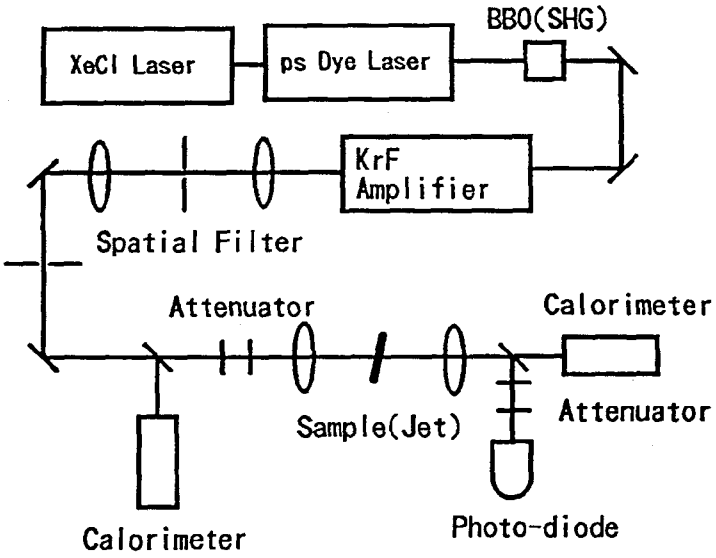
Ｔａｂｌｅ ３－２ アクリジンの吸収ピーク波長の溶媒依存性。

Solvent	Peak Wavelegth(nm)	σ_{02}(cm^2) at 248.5nm
Ｍｅｔｈａｎｏｌ	２４９．０	６．８×１０$^{-16}$
Ｅｔｈａｎｏｌ	２５０．０	５．６×１０$^{-16}$
Ｗａｔｅｒ(10%methnol)	２４９．３	－
Ｅｔｈｙｌｅｎｅ Ｇｌｙｃｏｌ	２５２．１	４．１×１０$^{-16}$

３．２－２ 飽和フルーエンスと残留吸収

[1] 測定装置

パルス幅２０ｐｓのＫｒＦレーザー光を照射して、飽和フルーエンスおよび残留吸収（Γ値）の測定した。飽和フルーエンス、および残留吸収の測定配置をＦｉｇ．３－６に示す。

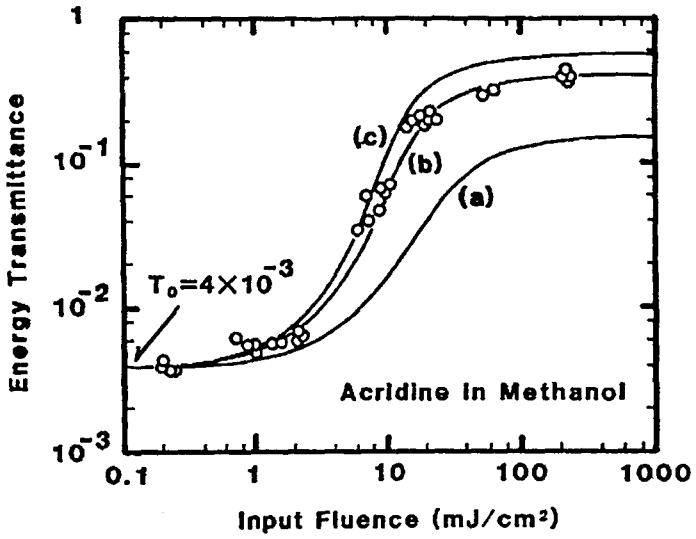


Ｆｉｇ．３－６ 飽和フルーエンス、残留吸収の測定配置。

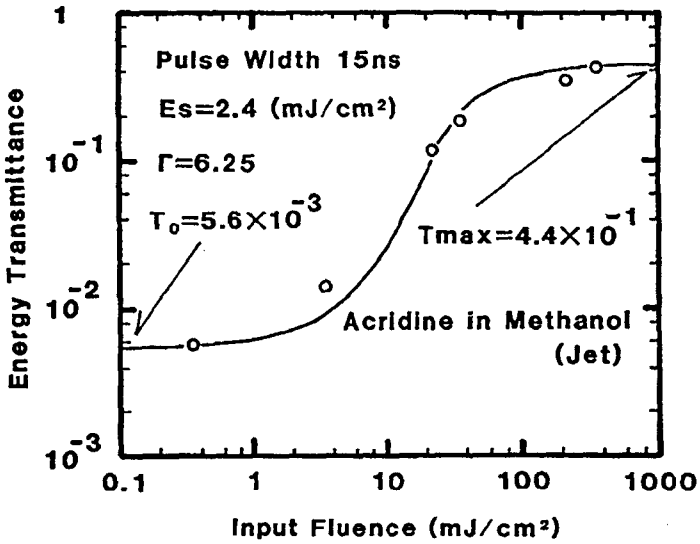
ＸｅＣｌレーザー励起のピコ秒色素レーザー光の第２高調波光を発生させ、放電形ＫｒＦレーザー増幅器を用いて２０ｐｓパルスを得た。残留吸収の測定には、基底状態からの吸収を完全に飽和させる必要があり、その照射フルーエンスは１００ｍＪ／ｃｍ^{2}を超える。光強度に換算すると５ＧＷ／ｃｍ^{2}に相当し、色素セルや溶媒中の多光子吸収や自己集束、誘導散乱が無視できない。セルを不要とし、同時に媒質長をできる限り短くするために、試料をジェットとして測定した。用いたアクリジンの濃度は７．５×１０$^{-4}$ｍｏｌ／ｌである。ジェットの厚さは溶媒に依存するので、試料毎に小信号透過率を測定し$\alpha_0 L_a$を求めた。小信号透過率より求めたジェットの厚さはメタノール溶液の場合１７６μｍであった。集光面積は実測値で０．４７ｍｍ^{2}である。照射フルーエンス変化には紫外吸収体（イノシン酸：ＩＭＰ）を用い０．１ｍＪ／ｃｍ^{2}から２５０ｍＪ／ｃｍ^{2}まで変化させた。ＩＭＰの入射光強度に対する直線性はあらかじめ厳密に確認した。光強度のモニターには上記カロリーメーターおよび校正した高速フォトダイオード（ HAMAMATU R1328U−02 ）とオシロスコープ（ Tektronix 7104 ）で行った。

[2]ピコ秒パルスに対する飽和特性

２０ｐｓパルス照射時のレーザーフルーエンスに対するアクリジンメタノール溶液の透過率をＦｉｇ．３−７に示す。両対数表示である。Ｆｉｇ．３−７の実線は、（３−１１）式により計算した飽和特性で、（ａ）はΓ＝３、（ｂ）はΓ＝６．３、（ｃ）はΓ＝１０の場合を示す。測定データに対して最小２乗解析を行って求めたアクリジン・メタノール溶液の飽和パラメータは、E_{sa}＝１．２ｍＪ／ｃｍ^2、Γ＝６．３であった。この飽和フルーエンスは、前記ＫｒＦレーザー用可飽和吸収体の条件を満たす値である。入力フルーエンスが２ｍＪ／ｃｍ^{2}以上で飽和を示し、２０ｍＪ／ｃｍ^{2}では０．２１まで透過率は増加した。しかし、２０ｍＪ／ｃｍ^{2}以上の入力フルーエンスでは、残留吸収により透過率は制限され、最大透過率は０．４２であった。



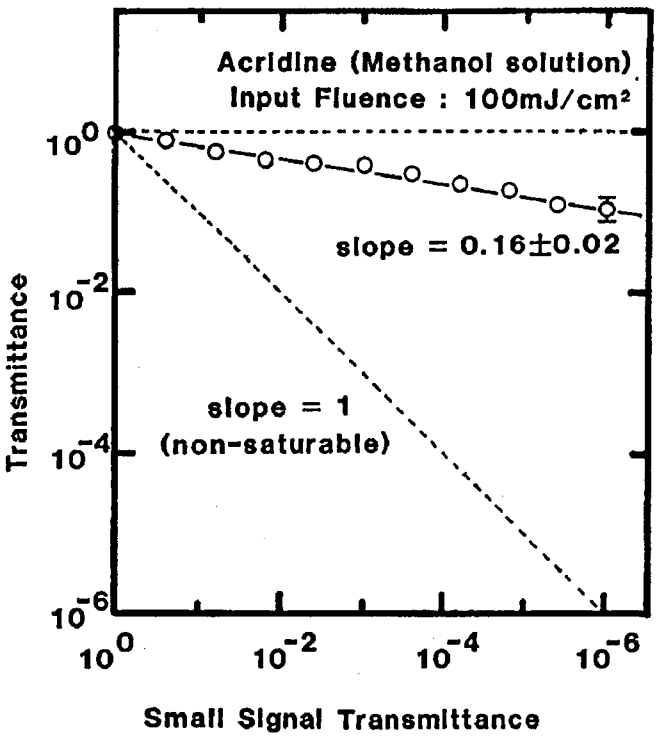
Ｆｉｇ．３－７　アクリジンメタノール溶液の
飽和特性（２０ｐｓパルス）。
（ａ）Γ＝３、（ｂ）Γ＝６．３、
（ｃ）Γ＝１０の計算結果を実線で示す。
Ｅsaは１．２mJ/cm2に固定した。



Ｆｉｇ．３－８　アクリジンメタノール溶液の
飽和特性（１５ｎｓパルス）。

[3]ＡＳＥに対する飽和特性

次に、ＡＳＥの透過率特性を調べるために、ナノ秒のＫｒＦレーザー光を照射して同様の測定を行った。１５ｎｓパルスに対する飽和特性をＦｉｇ．３－８に示す。得られた飽和フルーエンスはピコ秒照射時の約２倍であった。後で示すように、レーザーパルス幅よりも吸収回復が速いことによる。アクリジンはＡＳＥに対して飽和し難く、その抑制に有効であることが明らかになった。Γ値は２０ｐｓ照射測定値に等しく、残留吸収はピコ秒およびナノ秒に対しても非飽和である。



Ｆｉｇ．３－９　残留吸収のアクリジン濃度依存性。直線の傾きが１／Γに相当する。

励起状態からの吸収断面積σ_{1n}の色素濃度依存性を調べる為に、アクリジン濃度を変化させて、残留吸収を測定した。基底状態からの吸収を完全に飽和させる為に、照射フルーエンスは１００±２０ｍＪ／ｃｍ^{2}に固定した。この照射フルーエンスは、測定範囲において色素を完全に飽和させる為に必要なフルーエンスE_{abs}（（３－２）式参照）の５倍以上に相当する。小信号透過率T_0に対する最大透過率をＦｉｇ．３－９に示す。Γ値は測定範囲全域で傾き１／Γ＝０．１６の直線上に乗り一定値であった。Γ値は６．２５でＦｉｇ．３－６、Ｆｉｇ．３－７の測定結果と一致した。ＥＳＡを与えるσ_{1n}の値は３．１－２で述べたモデルを用いて、Γの定義（３－５）式から

$$\sigma_{1n} = \frac{\sigma_{02}}{\Gamma} = 6.8\times10^{-16} \times (0.16\pm0.02)$$

$$= 1.1\pm0.12\times10^{-16}\ \mathrm{cm}^2 \qquad (3-12)$$

と求められる。

得られたΓ＝６．２５はＢＢＱ等の値、Γ＝３よりも２倍以上大きく、アクリジンはこれまでに報告されている紫外可飽和色素の中で最も残留吸収の小さい色素であることが明かになった。[8]また、10^{-6}オーダーの減衰を１８０μm厚のジェットで与えるような高濃度条件でもΓ値に変化はなく、広い濃度範囲で使用可能であることが明らかになった。高利得増幅器と組み合わせてもＡＳＥ零利得システムを構成出来る。

次に、飽和フルーエンス、Γ値の溶媒依存性を測定した。飽和フルーエンスE_{sa}Γ値の溶媒依存性をＴａｂｌｅ ３－３にまとめて示す。最も低い飽和フルーエンスは溶媒が水の場合に得られ０．９ｍＪ／ｃｍ^{2}であった。一方、Γ値の最高値はエタノール溶液において得られ、７．３であった。これらの振る舞いからσ_{02}とσ_{1n}への溶媒効果は同一ではないことが推測出来る。

基底状態からの吸収断面積σ_{02}を用いて（３－７）式から計算により求めた飽和フルーエンスと、実測値を比較すると、メタノールでは等しく、エタノール、エチレングリコールでは実測値が小さい。エタノール、エチレングリコールではＳ２－Ｓ０の実効的な緩和時間が無視できないことを示唆している。原因としてＳ２－Ｓ１の緩和時間が変化した、あるいは、溶媒効果により吸収スペクトルが長波長側にシフトしていることから、Ｓ２の高い振動準位に励起され、Ｓ２中での振動緩和時間がレーザーパルス幅に比べ無視出来なくなったものとも考えられる。

実用上の観点から考察すると、エチレングリコールは粘度が高くジェットとして用いる場合に高い波面精度が得られる為に有利である。Γ値はやや低いが、１ｐｓ以下の超短パルス領域では分散や非線形効果を軽減出来るので有利であるとも考えられる。

Ｔａｂｌｅ ３－３　アクリジン飽和フルーエンス、Γ値の溶媒効果。

Ｓｏｌｖｅｎｔ	Ｅsa (mJ/cm²)	σ02x10¹⁶ (cm²)	σ1nx10¹⁶ (cm²)	Γ ≡ σ02／σ01
Ｍｅｔｈａｎｏｌ	１．２ (１．２)	６．８	１．１	６．２５
Ｅｔｈａｎｏｌ	１．１ (１．４)	５．６	０．８	７．３
Ｗａｔｅｒ (10% Methanol)	０．９	——	——	７．０
Ｅｔｈｙｌｅｎｅ Ｇｌｙｃｏｌ	１．５ (１．９)	４．１	０．８	５．０

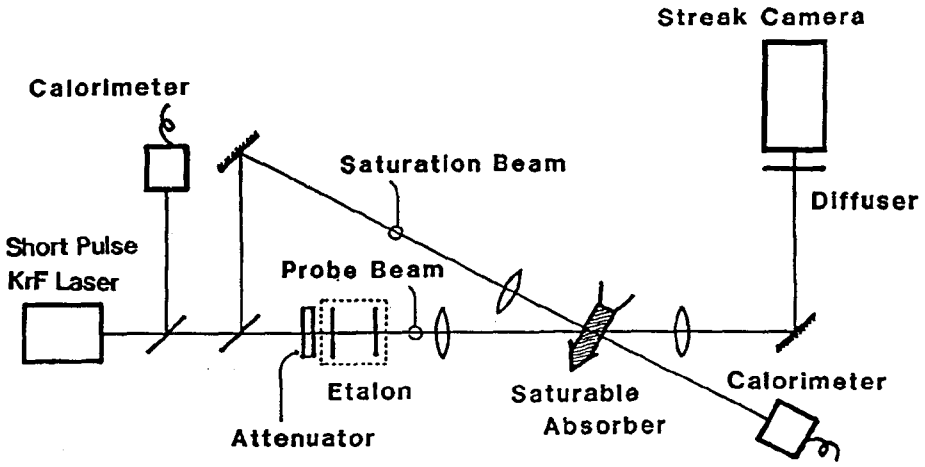
注）σ 02, σ 1nは２４８．５ｎｍにおける値。

Ｅsa欄（ ）内にσ 02より見積もった値を示す。（Ｅsa＝ｈν／σ 02）

結論として、何れの溶媒を用いても飽和フルーエンスは初期の要求を満たす１ｍＪ／ｃｍ²前後の低い値が得られることが分かった。エタノール溶液で得られたΓ値は、これまで報告されている色素を用いた可飽和吸収体の２倍以上[9)10)]であり、アクリジンは非常に残留吸収の少ない色素であることが明らかになった。これらの測定から、その飽和特性は短パルスＫｒＦレーザーシステムの要求を十分満たすものであることが示された。

３．２－３　吸収回復時間

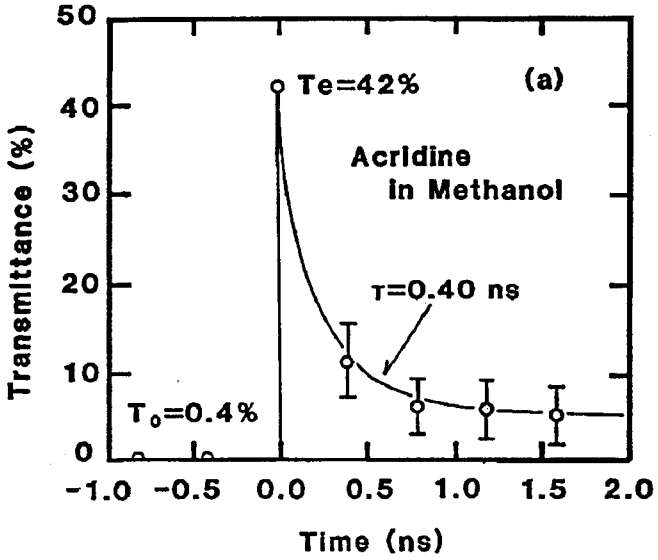
色素の吸収回復が利得回復に遅れるとレーザーパルスの後ろに新たなＡＳＥを発生する。このため、吸収の回復時間を測定しておく必要がある。



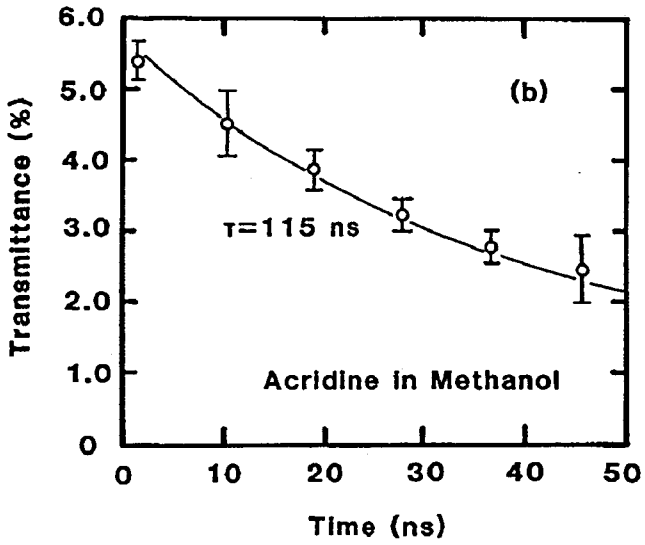
Ｆｉｇ．３－１０　吸収回復時間の測定配置。

吸収回復時間の測定配置図をＦｉｇ．３－１０に示す。短パルスＫｒＦレーザーからの出力光を２つに分け、その一つを飽和ビームとして色素を十分に飽和させる目的で色素ジェット上に集光した。照射フルーエンスは１００ｍＪ／ｃｍ^{2}に設定し、色素を完全に飽和させた。（Ｆｉｇ．３－７参照。）透過率の絶対値を求める為に、飽和ビームの入出力エネルギーはカロリーメーター（ GENTEC　ED−200 ）によりモニターした。もう一方のビームは、反射率９０％のミラー対より構成したエタロンによりパルス列に変換しプローブビームとした。パルスの間隔は０．４ｎｓである。プローブビーム自身が色素を飽和させないようにイノシン酸（ＩＭＰ）を用いて減衰させた。同時に、プローブビームを飽和ビームより小さく集光し、空間的に飽和ビームによって完全に飽和された領域をプローブビームが透過するように配慮した。

アクリジンメタノール溶液の透過率の時間変化をＦｉｇ．３－１１に示す。色素の小信号透過率は０．４％でありＦｉｇ．３－７の測定条件と同一である。Ｆｉｇ．３－１１の横軸は、色素ジェットへの飽和ビームの入射時刻を原点として表示した。飽和ビームの入射時刻は、プローブビーム中の第３パルスに一致させてある。縦軸はストリークカメラによって測定した透過率である。透過率の絶対値は、カロリーメーターによって測定した飽和ビームの透過率により求めた。



Ｆｉｇ．３－１１　アクリジンの吸収回復
（サブナノ秒領域）。



Ｆｉｇ．３－１２　アクリジン吸収回復
（１０ナノ秒領域）。

小信号透過率０．４％のサンプルは飽和光の入射と同時に４２％の透過率を示す。その後、急速に吸収を回復するが小信号吸収までには至らず、透過率５．４％に漸近する振る舞いを示した。透過率ピークから５．４％までの回復時定数τ_1を最小自乗法により解析しτ_1＝０．４±０．１ｎｓを得た。さらに詳しく吸収回復を調べる為に、エタロンの往復時間を９ｎｓに広げ、フォトダイオードと高速のオシロスコープ（Tektronix 7104）で透過率を測定した。同一の試料に対する測定結果をＦｉｇ．３－１２に示す。１．６ｎｓ以後は時定数τ_2＝１１５ｎｓのゆっくりとした吸収回復であることが明かになった。

吸収回復とＳ１準位の緩和時間との関係を調べる為にジェットにＫｒＦレーザーパルスを照射し、ストリークカメラにより蛍光の時間変化を観測した。色ガラスフィルター（HOYA B-390）を用いてＳ１－Ｓ０遷移の蛍光に相当するλ＝４００±４０ｎｍを選択して観測した。得られた蛍光波形は単純な指数減衰であり、その寿命τ_{10}はメタノール溶液においてτ_{10}＝０．４３±０．０４ｎｓであった。τ_{10}は温度依存性を持つが、本測定値は常温におけるこれまでの報告[11)12)]と一致する。

短い吸収回復時間τ_1はＳ１の寿命τ_{10}に非常に良く一致することから、Ｓ１－Ｓ０の緩和速度であることが明かになった。同様にエタノール溶液ではτ_{10}＝０．３２ｎｓであった。

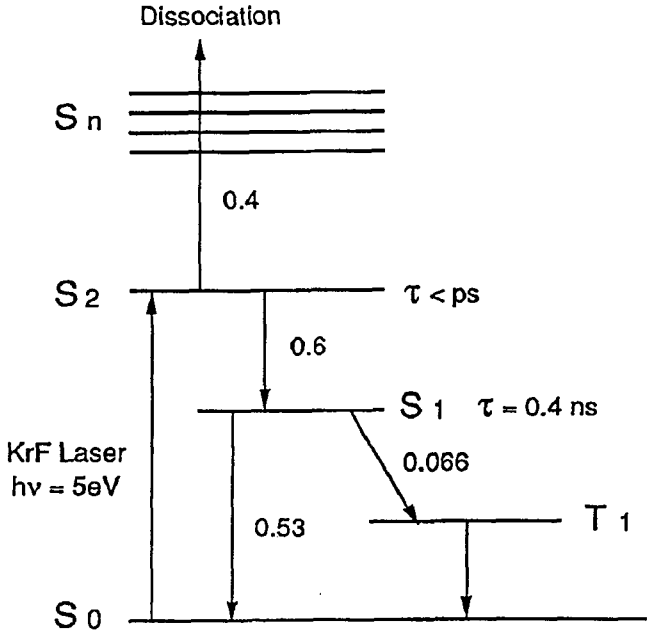
蛍光波形には、長い時定数（上記τ_2）の成分は観測されなかった。回復の遅れは、色素の一般的な性質から３重項状態Ｔ１に項間遷移[13)]したか、あるいは励起状態吸収により高励起状態から光解離したものと推測できる。

小信号透過率ｔ０が０．４％の場合、時定数τ_1で回復し到達する透過率ｔ１は５．４％であるから、Ｓ１を経由しかつＳ１から直接Ｓ０に遷移する分子数と全分子数の割合ηは

$$\eta = \frac{\log t_1}{\log t_0} = \frac{\log 0.054}{\log 0.004} = 0.53 \qquad (3-13)$$

である。一方、Ｓ１－Ｓ０緩和に対するＳ１－Ｔ１緩和の反応速度定数の比は０．１１[14)]の報告がある。これらの考察をまとめるとＦｉｇ．３－１３に示すような

緩和過程が成り立つ。



Ｆｉｇ．３－１３　アクリジンの緩和過程。
矢印右の数字は分配比を示す。

Ｓ１を経由する分子の割合ＱはＱ＝０．５３／（１－０．１１）＝０．６である。このことから、Ｓ２に励起された分子の内、４０％が多段階励起により解離したと考えられる。Ｓ１に緩和した６０％の内、５３％が直接Ｓ０に緩和し、残り６．６％がＴ１を経由して、Ｓ０に緩和する。実際には、Ｓ２－Ｔ２およびＳｎ－Ｔｎ間の緩和も考えられるが、Ｓ２以上の寿命はＳ１に比べて非常に短いので、高励起状態の項間遷移は実効的に無視することができる。

光解離量が４０％であることを考慮すると、前項で得られた高いΓ値は光解離による励起状態吸収の飽和であるとも推測できる。

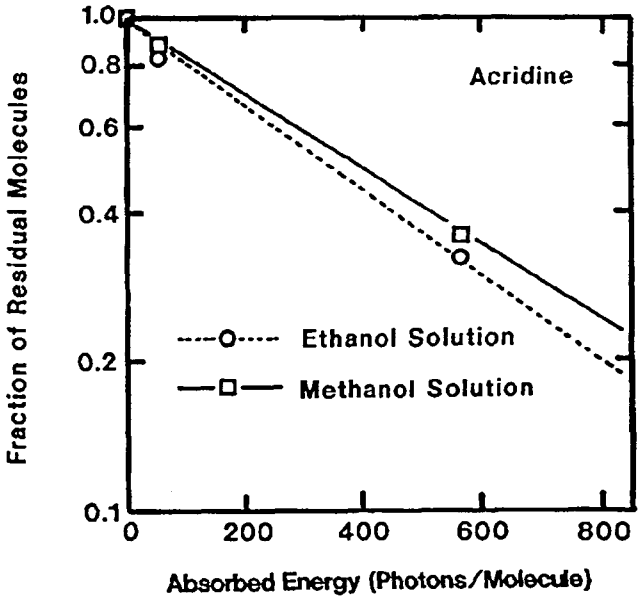
実用的見地から考察すると、長い時定数τ２は高繰り返し動作条件、例えばモード同期等への応用では障害となる可能性がある。

３．２－４　色素の劣化試験

初期分子の４０％は光解離することが明かになった。光照射による色素の劣化は重要な問題であると考え、寿命試験を行った。合わせて、光照射を行わず溶液として長期保存した場合の安定性も測定した。

[1]光分解

小量の分子に多くの光子を吸収させ、劣化の様子が顕著に現れる条件で測定を行った。５．５×１０$^{-6}$ｍｏｌ／ｌの低濃度アクリジン溶液を１ｃｍ角の石英セルに小量（３ｃｍ^3）封入した。溶液全体をＫｒＦレーザー（Lambda Physik EMG−150ES、パルス幅２０ｎｓ）で一様に照射した。照射フルーエンスは６７ｍＪ／ｃｍ^{2}である。１ショット毎の吸収スペクトルの変化を分光光度計により計測した。一般に、色素の寿命は溶媒によって大きく変化することが知られているので、エタノールおよびメタノールについて測定した。



Ｆｉｇ．３－１４　アクリジンのレーザー分解。

２４９ｎｍにおける吸光度は、ショット数に対して直線的に減衰し、十分多数回の照射の後では吸収は無視出来る値になった。この結果より、解離生成物による再吸収は無視出来るものと考え、吸光度の変化をアクリジン分子数の変化と見なして解析した。

光照射に対する残存分子数の変化をＦｉｇ．３－１４に示す。横軸は分子一つあたりの吸収光子数n_aを表す。累積入射フルーエンスE_{in}（Ｊ／ｃｍ^3）を入射光子密度n_pに換算すると

$$n_p = \frac{E_{in}}{h\nu} \qquad (3-14)$$

１個のアクリジン分子が吸収する光子数n_aはn_pに吸収断面積σ_{02}を乗じたものであるから

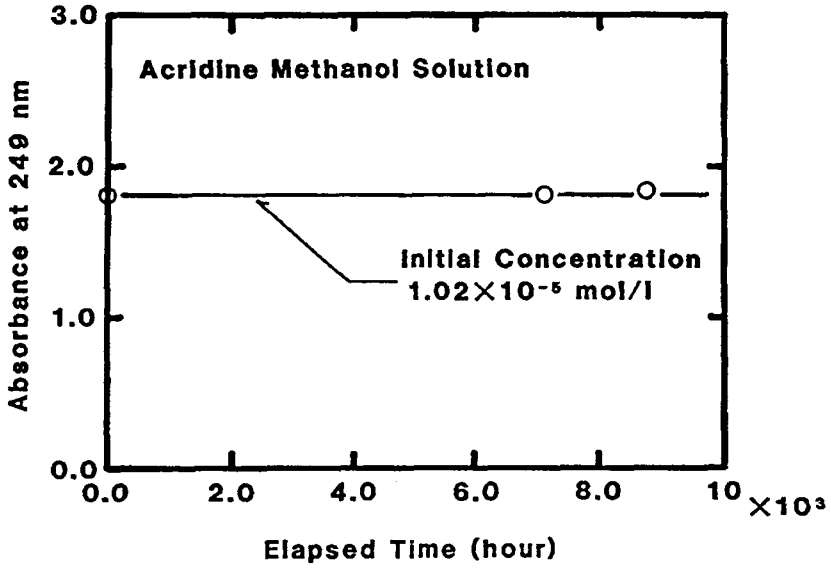
$$n_a = \sigma_{02}\, n_p = \frac{\sigma_{02}}{h\nu} E_{in} \qquad (3-15)$$

と求められる。分子数を半減させる為に必要な累積入力フルーエンスはメタノール溶液の場合、E_{in}＝０．４７Ｊ／ｃｍ^2、エタノール溶液の場合ではE_{in}＝０．４１Ｊ／ｃｍ^{2}であった。（３－１５）式を用いてn_aに換算するとメタノール溶液で４００個、エタノールでは溶液では３５０個の光子を吸収して半減することが分かった。比較の為に、ＫｒＦレーザー励起で使用される色素ＢＭＴの寿命を求めると１０８個光子／分子である。アクリジンはＢＭＴよりも光化学的安定度が高い。長波長のＸｅＣｌレーザー（３０８ｎｍ）により励起される色素Ｃ３０７等と同等の寿命を持つことが分かった。

色素の安定度は溶媒の極性の強さ（誘電率）に依存する。例えばＣ１０２色素では誘電率の高いメタノールではエタノールよりも１．５倍程度寿命が長く、シクロヘキサン溶液に対して１０倍長寿命である。アクリジンの場合も同様にメタノール溶液で寿命が長いことが明らかになった。Ｃ１０２の場合、酸素が光解離に大きな影響を与えるとされており、溶媒中に空気の泡が存在する場合に著しく劣化する。アクリジンの場合にも同様な注意が必要と思われる。

[2]長期保存性

一方、光照射を行わず、溶液として常温で保存した場合の安定度をＦｉｇ．３－１５に示す。



Ｆｉｇ．３－１５　アクリジンの長期保存安定度。

図の横軸は経過時間、縦軸は吸光度である。８．８×１０^{3}時間（１年間）保存後でも、２４９ｎｍにおける吸光度、および吸収スペクトルには全く変化を生じなかった。

以上の測定からアクリジンは紫外光照射に対して他のレーザー色素以上に安定であり、光解離は実用上問題ないことが示された。また、長期間保存に十分耐えうることが明らかになった。

３．２－５　まとめ

初めに、短パルスＫｒＦレーザー増幅器列中においてＡＳＥを抑制するための必

要条件を検討した。次に、ＫｒＦレーザー波長域に強い吸収を持つ色素群の吸収スペクトル、吸収断面積を測定し、最も大きな吸収断面積を持つアクリジンを選択した。アクリジンの飽和特性を実測し、可飽和色素としての有効性を示した。

[1] 増幅器利得に等しい損失をＡＳＥに与える零利得条件において１ｐｓレーザーパルスで可飽和吸収体を飽和させる為には、可飽和吸収体の飽和フルーエンスとしてE_{sa}＝１ｍＪ／ｃｍ^{2}が必要である。

[2] ＫｒＦレーザー発振波長に吸収帯を持つ三環芳香族を中心に可飽和色素の分光適調査を行った。含窒素系線形三環芳香族のアクリジンが最も大きな吸収断面積σ_{02}＝６．８×１０$^{-16}$ｃｍ^{2}を持つことを明かにした。

[3] メタノール、エタノール、水、エチレングリコールを溶媒として用い、アクリジンの吸収スペクトル、２０ｐｓＫｒＦレーザーパルスに対する飽和フルーエンス、および残留吸収を測定した。何れの溶媒を用いても、初期の目的（上記 [1] ）を満たす飽和フルーエンスE_{sa}＝１ｍＪ／ｃｍ^{2}前後の値が得られた。同時に、Γ値５～７．３を得た。最も優れた飽和特性はエタノール溶液により得られ、飽和フルーエンスE_{sa}は１．１ｍＪ／ｃｍ^2、残留吸収はΓ値において７．３であった。このΓ値は他の紫外可飽和色素の２倍以上であり、アクリジンは残留吸収が十分少ない可飽和色素であることが明かになった。

[4] 吸収回復時間を測定した。吸収回復は０．４ｎｓと１１５ｎｓの２つの時定数を持つことを明らかにした。前者はＳ１準位の蛍光寿命一致した。この吸収回復時間はＫｒＦレーザーの上準位寿命よりも十分短く、ＡＳＥの抑制に有効である。一方、後者は光解離生成物の再結合時間およびＴ１準位の寿命によることが分かった。

[5] 実用上問題となる紫外光による光化学的安定性を測定し、他の紫外励起レーザー色素と同等以上であることを明らかにした。また、溶液の長期安定性を測定し、室温において１年間以上の保存に耐えることを示した。

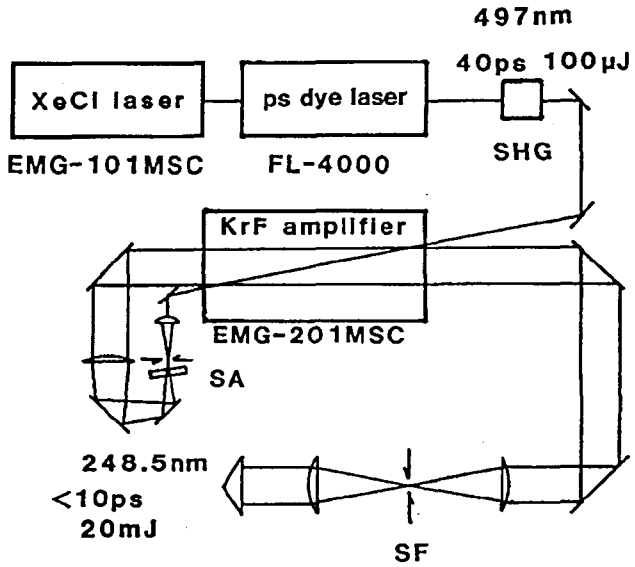
３．３　ピコ秒ＫｒＦレーザーシステムのＡＳＥ抑制

本節では、実際にアクリジンをピコＫｒＦレーザーに用いて、その有効性を検証する。

初めに、レーザー装置について説明する。次に、ＡＳＥの抑制効果、およびレーザーエネルギーに与える損失についての測定結果を示す。

３．３－１　ピコ秒ＫｒＦレーザーシステム

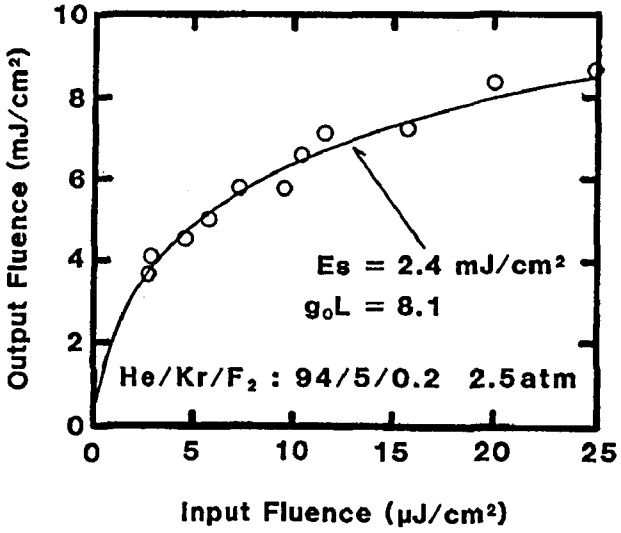
用いた短パルスＫｒＦレーザーシステムの構成をＦｉｇ．３－１６に示す。ピコ秒パルスの発生には、３．２節と同様に、ＸｅＣｌレーザー励起の短共振器色素レーザー（ Lambda Physik FL-4000T ）[15]を用いた。発振器および３段の色素増幅器にはＣ３０７色素を用いた。色素レーザー波長を４９７ｎｍ設定し、ＢＢＯ（ β －ＢａＢ$_2$Ｏ$_4$）非線形光学結晶を用いて第２高調波光を発生（ＳＨＧ： Second Harmonic Generation ）させＫｒＦレーザー発振波長を得た。



Ｆｉｇ．３－１６　短パルスＫｒＦレーザーシステムの構成。

発生させた紫外光は放電型ＫｒＦレーザー増幅器（Lambda Physik EMG−201MSC）によりダブルパス増幅した。パス間にはｆ＝１００ｍｍと１０００ｍｍのレンズからなる拡大率１０の光学系を設け、第２パスのビーム径を励起断面積一杯に広げると同時に、ビーム広がり角を１／１０に減少させた。第１パスのビームサイズは４×７ｍｍ^2、第２パスは励起断面積で制限される９×２７ｍｍ^{2}である。レンズの集光点にはφ１００μｍのダイヤモンドピンホールを設け、軸外れのＡＳＥ光を除去した。ピンホールの後方には可飽和色素ジェットを設け、アクリジンメタノール溶液を循環させた。レーザーの利得持続時間は２５ｎｓ（ＦＷＨＭ）である。増幅器の出力側にも空間フィルターを設け、第２パスのＡＳＥを除去した。空間フィルターはｆ＝５００ｍｍのレンズ対とφ５０μｍのピンホールから構成し、内部は真空排気した。ピンホール半径をｗとすればフィルターの制限角θはθ＝ｗ／ｆ＝５０μｒａｄである。一様強度のビームを仮定すると、幅ｄの短辺側における回折限界角θｄはθｄ～λ／ｄ＝２８μｒａｄである。空間フィルターを透過するＡＳＥ光は回折限界角の２倍程度であり、レーザー光と空間的に区別出来ない成分である。

第２章で述べたように、増幅器中の短パルスレーザー光とＡＳＥのコントラスト比の劣化は、短パルス光に対してのみ増幅器が飽和することに因る。このため、ＡＳＥの抑制効果を評価するには、あらかじめ増幅器の飽和の程度を知る必要がある。初めにレーザー増幅器の小信号利得および飽和フルーエンスを実測した。



Ｆｉｇ．３−１７　放電型ＫｒＦレーザー増幅器の増幅特性。

用いたレーザーガス組成は放電励起として一般

的なもので、He／Kr／F_2＝２３２０／１７４／６で全圧２．５atmである。ダブルパス増幅器の折り返し部分で、第２パスへの入力フルーエンスを変化させて増幅特性を測定した。第２パスへの入力フルーエンスに対する出力光フルーエンスの変化をＦｉｇ．３－１７に示す。この入出力特性を第２章で述べたFrantz-Nodvikのモデルを用いて最小自乗解析し、利得の飽和フルーエンスE_s、および小信号利得・利得長積g_0Lを求めた。図中の実線は得られたレーザーパラメータ：E_s＝２．４mJ／cm^2、g_0L＝８．１により再現した増幅特性を示す。小信号利得はexp（８．１）＝３２９５倍であり、ダブルパスでは約10^7倍に達する。非常に高い利得であるが、エキシマレーザーとしては標準的な値である。

測定した入力光強度の全域で、増幅器の出力フルーエンスは飽和フルーエンスを上回っており、増幅器は飽和に達している。特に、入力フルーエンスが１５μＪ以上の領域では、出力フルーエンスは飽和フルーエンスの３倍以上であり、増幅器の出力端における利得飽和の程度は著しい。入力フルーエンスが２５μＪでは飽和利得は小信号利得の僅か１／１０である。このように、レーザー光は飽和利得で増幅され、その一方、ＡＳＥは小信号利得で増幅されるので、コントラスト比の劣化は避けられない。

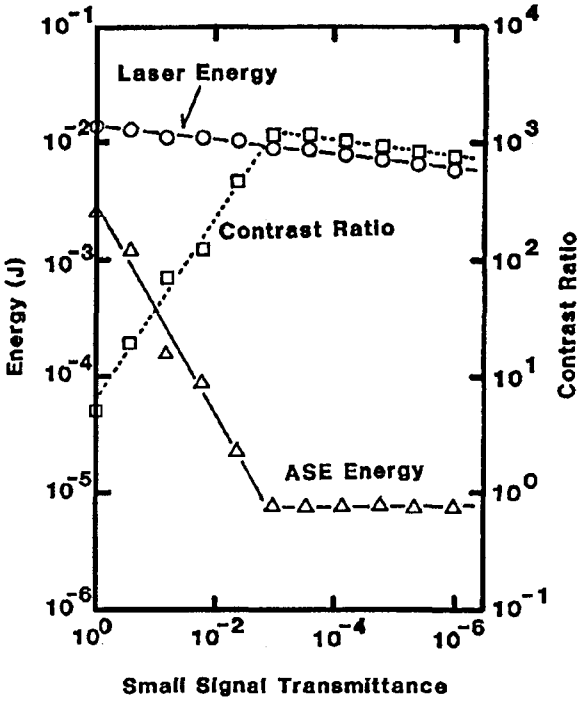
３．３－２　可飽和色素を用いたＡＳＥの制御

上記配置で得られたＳＨＧ光のエネルギーは３μＪである。これを入力光としたＫｒＦレーザー増幅器の第１パス出力では、レーザーエネルギー１ｍＪ、ＡＳＥエネルギー１４０μＪであった。わずか１パスの増幅によってコントラスト比は７．１に劣化した。

ＡＳＥ抑制効果を調べる為に、ダブルパス増幅器の折り返し部分に挿入したアクリジンジェットの小信号透過率を１から10^{-6}まで変化させて、第２パス出力のレーザー、ＡＳＥエネルギーを測定した。ジェット上におけるレーザー光のフルーエンスは１００mＪ／cm^2である。測定結果をＦｉｇ．３－１８に示す。図の縦軸はレーザー、およびＡＳＥのエネルギー、横軸はジェットの小信号透過率で、両対数表示である。透過率１では、レーザーエネルギー１３．７ｍＪに対しＡＳＥは

２．７ｍＪで、コントラスト比は５．１に劣化した。空間フィルターを設けても、増幅によるコントラスト比の劣化は避けられない。小信号利得は３３００倍／パスであるから、第２パスへ入力されたＡＳＥの中で出力部の空間フィルターを通過できる成分はわずか０．８μＪと見積ることができる。この結果から、コントラスト比の著しい劣化が僅か１パスの増幅で生じていることが明らかである。

アクリジンジェットの小信号透過率T_0を減少させるにつれてＡＳＥは線形に減少し、T_0が10^{-3}以下の領域では８μＪ一定になった。コントラスト比は５．１から１２００まで向上した。２桁以上の改善である。減少するＡＳＥは第１パスで発生した成分であり、残留成分は第２パスで発生したＡＳＥである。この結果から、増幅システム内部で発生するＡＳＥは、そのほとんどが前段増幅器により発生したＡＳＥが後続の増幅器中で成長したものであることが明かである。



Ｆｉｇ．３－１８　ＡＳＥ、レーザーエネルギーのアクリジン濃度依存性。

高速光電管とオシロスコープによる観測では、レーザーパルス透過後にＡＳＥの発生は観測されず、前記長い吸収回復時間の影響は実用上無視できることが示された。

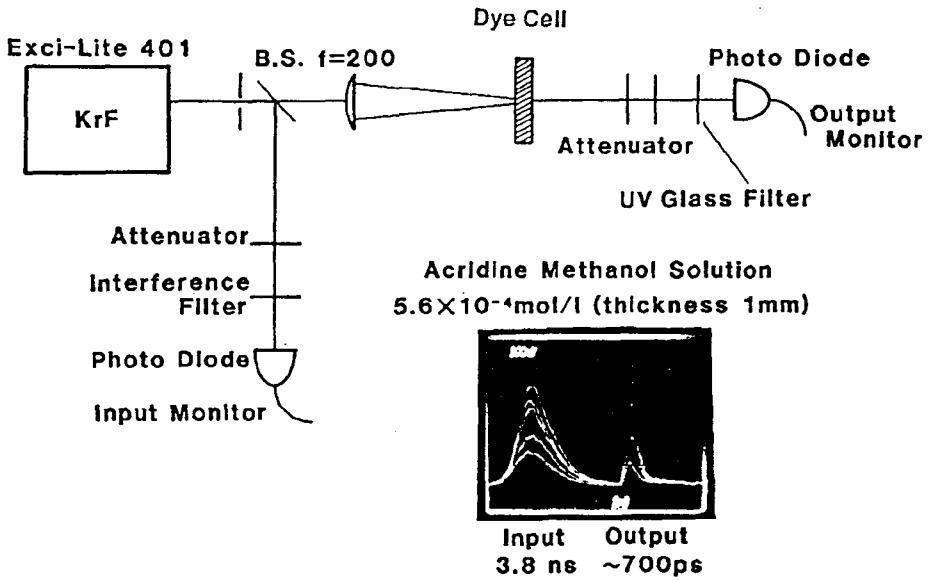
$T_0 = 10^{-3}$においてΓ値から計算されるアクリジンジェットの透過率は０．３４である。しかし、増幅器はもともと強く飽和しているので入力エネルギー低下の影響を受け難く、アクリジンを用いない場合の７割を出力エネルギーが得られた。

これらの測定結果から、アクリジンはＫｒＦレーザーのＡＳＥ抑制に有効であることが示された。

３．３－３　ナノ秒レーザーの自己短パルス化への応用

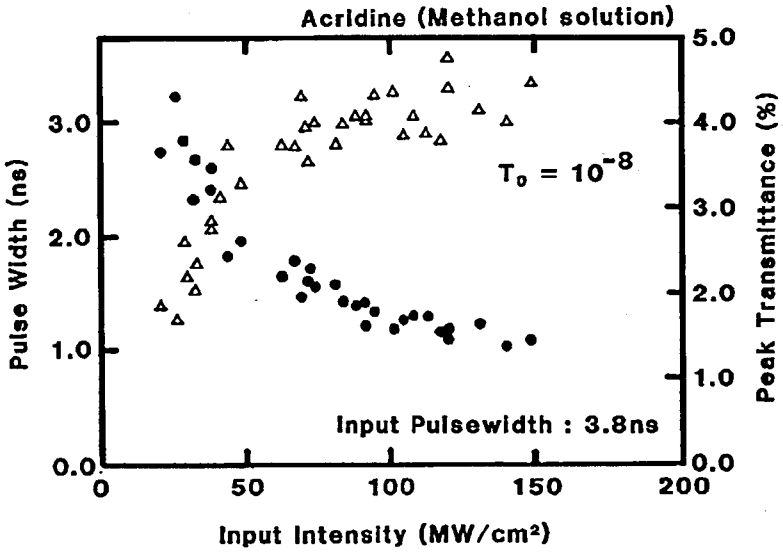
市販のナノ秒ＫｒＦレーザーに可飽和色素を用いて、簡便にピコ秒領域のパルスを発生させる応用例[16)17)18)19)]がある。ここでは、アクリジンを用いて同様の実験を行い、他の紫外可飽和色素と性能を比較する。

自己短パルス化の実験配置図をＦｉｇ．３－１９に示す。放電型ＫｒＦレーザー（MSNW社製，model Exci-Lite 401）に不安定共振器を設け、回折限界の発振出力を得た。レーザーの出力パルス幅は３．８ｎｓ（ＦＷＨＭ）で、パルスエネルギーは６００μＪである。



Ｆｉｇ．３－１９　自己短パルス化の測定配置。
入出力波形を右下に示す。

ピコ秒領域の実験に比べ光強度が低いので、色素セルの多光子吸収や自己集束は大幅に緩和される。しかし、溶媒中の自己収束はナノ秒パルスでも問題である。このため、アクリジンは溶液長１ｍｍの薄いセルに入れ、ポンプにより循環させた。このセルは合成石英製で、窓の厚さは３ｍｍである。セルは焦点距離２００ｍｍのレンズから１５２ｍｍ離れた位置に配置した。アクリジンの小信号透過率$T_0 = 10^{-10}$の場合の典型的な入出力波形をＦｉｇ．３－１９の右下に示す。レーザーパルス幅３．８ｎｓに対して、７００ｐｓの出力パルスを得た。単にパルス幅が短くなるだけではなく、パルスの立ち上がり時間が非常に急峻化されている様子が明かである。Ｆｉｇ．３－２０にパルス幅と透過率の入力光強度依存性を示す。Γ値から計算される最大透過率T_mは$T_0 = 10^{-8}$の場合５．４％で実験結果と良く一致する。絶対的な透過率は数％オーダーであるが、10^{8}～10^{10}の広いダイナミックレンジで振幅変調を行っていることを考慮すれば妥当な値である。他の色素に比べ１桁以上高い透過率が得られた。



Ｆｉｇ．３－２０　入出力特性（$T_0 = 10^{-8}$）。
●：出力パルス幅、△：透過率。

第２章で述べたように、ＫｒＦエキシマの生成には数ｎｓの時間がかかる為にレーザー発振器から直接１ｎｓあるいはサブナノ秒のパルスを得ることは困難である。

しかし、本実験のように色素の吸収飽和による変調を用いて自己短パルス化を行うと、市販の放電型レーザー発振器を用いて容易にサブナノ秒ＫｒＦレーザー光が得られる。しかも、発振器から発生するＡＳＥ光は非常に高いコントラスト比で抑制されている。このため、ＡＳＥの発生を憂慮することなく、後段に十分な利得を持った増幅器を配置して高エネルギーのレーザーパルスを発生させることが可能である。

３．３－４　まとめ

アクリジンをピコ秒ＫｒＦレーザー増幅システムに用いてＡＳＥの抑制効果を測定した。

[1] ＫｒＦレーザー増幅器の利得は高く、飽和フルーエンスが低い為に増幅器は容易に飽和する。増幅によるコントラスト比の劣化は不可避である。空間フィルターを用いても得られたコントラスト比は僅か５．１であった。

[2] アクリジンの使用によりコントラスト比１２００を得た。アクリジンが短パルスＫｒＦレーザーのＡＳＥ抑制に有効であることを示した。

[3] 短パルス光に対してレーザー増幅器が強く飽和している条件では、残留吸収によるレーザーエネルギーの減少は著しく軽減されることを示した。

次に、ＫｒＦレーザーの自己短パルス化実験を行い、飽和特性を他の紫外可飽和色素と比較して、アクリジンの有効性を示した。

[4] 小信号透過率10^{-10}の試料を用いて、３．８ｎｓのＫｒＦレーザー光を７００ｐｓに短縮した。アクリジンを用いた自己短パルス化によって、サブナノ秒ＫｒＦレーザーパルスを容易に発生出来ることを示した。同時に、他の色素に比較して１桁以上高い透過率を得た。

３．４　むすび

紫外短パルスレーザーシステムにおいて必要不可欠な光学素子である可飽和吸収体を、ＫｒＦレーザー波長において初めて実用となるレベルで開発した。

初めに、ＫｒＦレーザー用可飽和吸収体として必要な条件を考察した。可飽和色素の基礎特性を測定し、その有効性を評価した。

[1] E_{sa}＝１ｍＪ／ｃｍ^{2}の低い飽和フルーエンス、小さい残留吸収が紫外可飽和吸収体の選択上重要なパラメータであることを示した。

[2] 含窒素系線形三環芳香族のアクリジンが上記飽和フルーエンス、残留吸収を満たすことを示した。溶媒効果を調べ、エタノール溶液が最も優れた飽和特性（E_{sa}＝１．１ｍＪ／ｃｍ^2、Γ＝７．３）を示すこと明かにした。吸収回復時間は０．３ｎｓ（メタノール溶液）であり、ＫｒＦエキシマの利得回復時間よりも十分速いが分かった。同時に、レーザーパルス透過後のＡＳＥの抑制に対しても有効であることを示した。

[3] 実用上問題とされる紫外光による光化学的安定性は他の紫外レーザー励起色素に比べて遜色ないことを明らかにした。また、溶液は室温で１年間保存しても劣化を生じないことを示した。

次に、アクリジンを短パルスＫｒＦレーザーに用いてその実用性を検証した。

[4] 増幅器の利得に相当する吸収を持つ可飽和色素を増幅器間に挿入する、「ＡＳＥ零利得システム」を構成し、ＡＳＥの減少、レーザー光の増幅特性について実験的に考察した。零利得システム化により、前段からのＡＳＥを完全に抑制し、コントラスト比を１０^{3}倍以上に改善した。

[5] 放電型レーザーの自己短パルス化を行った。３．８ｎｓの入力光を０．７ｎｓまで短縮した。同時に、他の可飽和色素よりも１０倍以上高い透過率が得られることを示した。

参考文献

[1] I.B.Berlman:"Handbook of Fluorescence Spectra of Aromatic Molecules" second edition, ACADEMIC PRESS New York and London,1971.

[2] M.Hercher:Appl.Opt.,vol.6,pp.947−954(1967).

[3] C.R.Giuliano and L.D.Hess:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−3,pp.358−367(1967).

[4] D.Magde, S.T.Gaffeny, and B.F.Campbell:
IEEE J. Quantum Electron.,vol.QE−17,pp.489−495 (1981).

[5] W.E.K.Gibbs:Appl. Phys. Lett.,vol.11,pp.113−115(1967).

[6] R.S.Taulor and S.Mihailov:Appl.Phys.B,vol.B38,pp.131−137(1985).

[7] レーザー色素に関するデータは全て
Ulrich Brackmann:"Lambdachrome Laser Dyes",LAMBDA PHYSIK 1986. による。

[8] R.S.Taylor and S.Mihailov:Appl. Phys. B,vol.38,pp.131−137(1985).

[9] C.S.Sexton and W.H.Steier:IEEE J. Quantum Electron.,vol.QE−20,pp.1114−1117(1984).

[10] M.Kaschke, N.P.Ernsting, and F.P.Schaefer:
Opt. Comm.,vol.66, No.4, pp.211−215 (1988)

[11] S.L.Shapiro and K.R.Winn:J. Chem. Phys.,vol.73,pp.1469−1470(1980).

[12] S.L.Shapiro and K.R.Winn:J. Chem. Phys.,vol.73,pp.5958−5962(1980).

[13] Y.Hirata and I.Tanaka:Chem. Phys. Lett.,vol.41,pp.336−338(1976).

[14] L.J.Noe, E.O.Degenkolb, and P.M.Rentzepis:J. Chem. Phys.,vol.68,pp.4435−4438(1978).

[15] Z.Bor and B.Racz:Appl.Opt.,vol.24,pp.1910−1913(1985).

[16] T.Varghese:Appl. Phys. Lett.,vol.41,pp.684−686(1982).

[17] Y.S.Huo, J.Glinski, X.J.Gu, and R.F.Code:Opt. Comm.,vol.51,pp.181−185(1984).

[18] Ch.G.Christov, I.V.Tomov, I.V.Chaltakov, and V.L.Lyutskanov:
Opt. Comm.,vol.52,pp.211−214(1984).

[19] S.Szatmari, and B.Racz:Opt. and Quantum Electron.,vol.18,pp.20−24(1986).

第４章　２重可飽和吸収体と飽和増幅を用いた内部パルス圧縮法

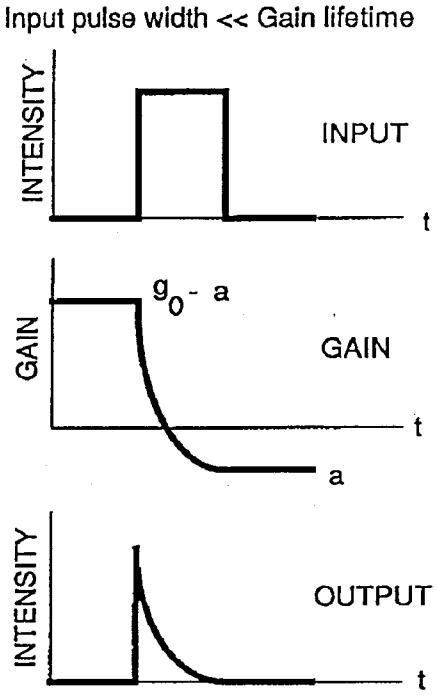
サブピコ秒パルスは光学素子の自己位相変調（ＳＰＭ）によってスペクトル幅が広がり、さらに、群速度分散（ＧＶＤ）によってパルス広がりを起こすことを第２章で述べた。本章では、増幅器列中で１０ｐｓの入力パルスから４００ｆｓの出力パルスを得る内部パルス圧縮法について述べる。この方法では、パルス幅は最終段増幅器出力を除いて１ｐｓ以上であるため、ＧＶＤやＳＰＭの影響を受け難い。本パルス圧縮法はＫｒＦレーザーのみならず、高利得、低飽和フルーエンスを持つ他のレーザーに応用可能である。

４．１　可飽和吸収体と飽和増幅を用いたレーザーパルス圧縮と問題点

可飽和吸収体を用いたパルス圧縮法[1]はこれまで幾つか報告されてたが、圧縮率と動作の安定性は両立していない。初めに、安定に高圧縮率を得るための条件を考察する。

４．１－１　入力パルス波形と圧縮率

ピコ秒あるいはフェムト秒パルス増幅では、レーザーパルスによるエネルギー引出し時間はレーザー上準位寿命に比べ非常に速い。このため、上準位寿命の比較的短いエキシマレーザーや色素レーザーも蓄積型動作をする。これらのレーザーは高い小信号利得と低い飽和光強



Ｆｉｇ．４－１　飽和増幅による出力パルス幅の減少。

度を持ち、容易に強い利得飽和を生じる。

エネルギー蓄積型増幅器の増幅過程では、Ｆｉｇ．４－１に示すように利得は飽和によって時間と共に単調減少する。増幅器の飽和が十分に強い時には、出力波形は著しく歪み、パルス幅が減少する。このパルス圧縮は原理的にエネルギー引き出しに因るから、圧縮に伴う損失はなく効率の良い方法である。

以下、パルス圧縮の生ずる条件を定量的に考察する。第２章ですでに述べたように、２ａｔｍ程度のレーザー動作条件におけるＫｒＦレーザー媒質の横緩和時間は数１０ｆｓである。このため、数１００ｆｓパルス幅を仮定した場合、レーザー増幅器の帯域を考慮する必要は無く、以下の解析はレーザー光の強度のみを扱うことにする。

飽和による利得励起長積の変化$\Delta g(t)L$は、増幅により引き出された光強度$I_{ex}(t)$の関数であって、ＫｒＦレーザーの誘導放出断面積をσとすれば

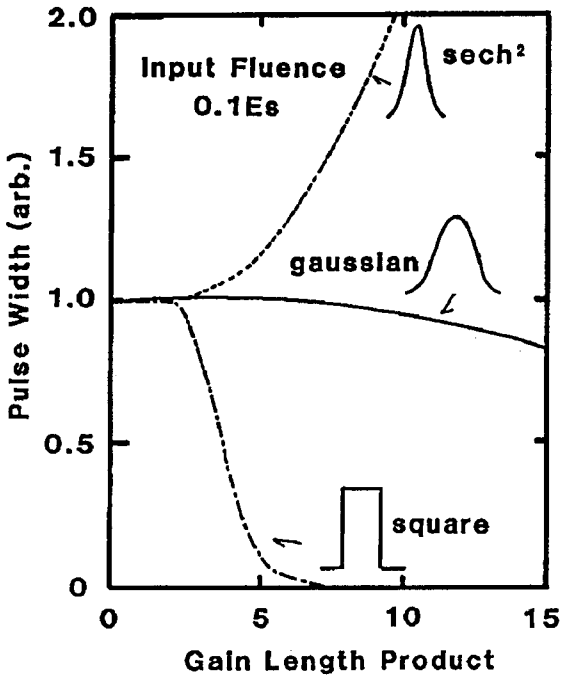
$$\Delta gL = \sigma \Delta nL = \frac{\sigma}{h\nu}\int_0^{t1} I_{ex}(t)\,dt = \frac{E_{ex}(t_1)}{E_s} \qquad (4-1)$$

で与えられる。ここで、E_sは利得の飽和フルーエンス：$E_s \equiv h\nu/\sigma$、ΔnはＫｒＦレーザー上準位密度（一般には反転分布密度）の変化、$h\nu$は光子エネルギー、E_{ex}は時刻ｔまでに上準位から引き出されたエネルギー密度である。出力パルス波形は利得の絶対値によらず、その変化$\Delta g_0 L$に依存する。また、出力パルス幅は利得の減少時間により決まるので、利得の変化率$dg(t)L/dt$に反比例する。（４－１）式をｔで微分して、

$$\frac{dg(t)L}{dt} = -\frac{I_{ex}(t)}{E_s} \qquad (4-2)$$

が得られる。（４－２）式は、圧縮後のパルス幅は増幅利得に無関係に引出し光強度のみによって決まることを示している。

パルス圧縮が生ずるには、利得が飽和を起こす前に入力パルスが立ち上がる必要がある。パルスの立ち上がり時間が利得の飽和速度よりも長い場合には、入力パルスがピークに達するよりも早く利得が飽和を起こす。結果として、出力ピーク値は減少しパルス幅はむしろ増加する。次に示すように、最小出力パルス幅は入力パルスの立ち上がり時間にほぼ等しい値をとる。



Ｆｉｇ．４－２　増幅によるパルス幅の変化。

Ｆｉｇ．４－２は、パルス幅変化をＧａｕｓｓ型、ｓｅｃｈ^{2}型、及び矩形パルスについて数値計算した結果である。この計算でも、利得帯域幅は考慮していない。Ｆｉｇ．４－２の縦軸は、入力パルス幅で規格化してあり、入力フルーエンスは０．１Ｅｓである。ＫｒＦレーザー媒質を仮定して、利得の１／１０に相当する非飽和吸収を与えてある。

立ち上がり時間を持たない矩形パルスでは、パルス幅は極限まで減少する。立ち上が時間とパルス幅のほぼ等しいＧａｕｓｓ型パルスでは、パルス幅に殆ど変化はない。一方、パルス幅よりも立ち上がり時間の長いｓｅｃｈ^{2}型パルスでは、増幅に連れパルスは前方へ広がりパルス幅の増加が生じる。これらの考察から、入力パルスの高速成形がパルス圧縮には不可欠であることは明かである。

４．１－２　可飽和吸収体を用いた入力パルスの成形

３．３－３で示したように、可飽和吸収体を用いて立ち上がり速度を速めることが出来る。ここでは、吸収回復時間（寿命）が出力パルス幅よりも十分長い場合を仮定して解析を進める。吸収飽和速度も上記利得飽和速度と同様に、吸収飽和フルーエンスE_{sa}と吸収されたエネルギーE_{abs}によって記述できる。吸収変化量$\Delta\alpha L$は、（４－１）式の利得を吸収に置き換え、

$$\Delta\alpha L = \frac{E_{abs}}{E_s}. \qquad (4-3)$$

吸収飽和速度$d\alpha L/dt$は（４－３）式をｔで微分して

$$\frac{d\alpha L}{dt} = -\frac{I_{abs}}{E_{sa}}. \qquad (4-4)$$

（４－４）式より、吸収飽和速度は、吸収される光強度に比例する。パルス圧縮の為には吸収は利得よりも速く飽和する必要がある[2)]ので、

$$\frac{I_{abs}}{E_{sa}} > \frac{I_{ex}}{E_s} \qquad (4-5)$$

の条件を満たす必要がある。

吸収量αLが十分に大きく、かつ小信号状態では、吸収光強度I_{abs}は入力光強度I_{in}に等しいものと見なせるので、吸収飽和速度は入力光強度に比例する。吸収飽和によって得られる立ち上がり時間$\tau_{r(10\% \to 90\%)}$は吸収される光強度I_{abs}を一定と仮定した場合、$E_{abs(10-90)} = E_{sa}\Delta\alpha L_{(10-90)}$を立ち上がりに必要な吸収エネルギーとして

$$\tau_r = \frac{E_{abs(10\text{-}90)}}{I_{abs}} = \frac{E_{sa}}{I_{abs}} \cdot \Delta\alpha L_{(10\text{-}90)}$$

$$= \frac{E_{sa}}{I_{in}} \ln \frac{0.9}{0.1}$$

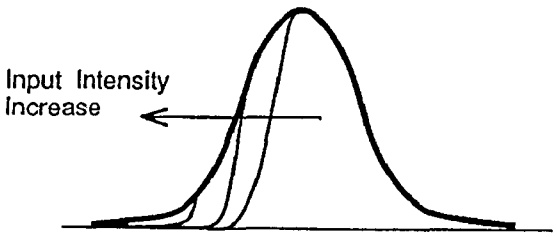
（４－６）

で与えられる。入力光強度I_{in}は溶媒中のビーム自己集束や多光子吸収により１０GW／cm^2程度に制限される。このため、最小パルス幅は可飽和色素の飽和フルーエンスE_{sa}により決まる。飽和フルーエンスが小さい程、速い飽和速度が得られる。

本研究で開発したアクリジン（E_{sa}～１mJ／cm^2）を用いるとτ_r＝２２０ｆｓが期待出来る。

４．１－３　飽和点と飽和速度

可飽和色素の吸収飽和速度$d\alpha L/dt$は（４－４）式で示されるように、吸収された光強度と飽和フルーエンスの比で表される。一方、第３章で述べたように可飽和色素が完全に飽和するまでに吸収するエネルギーは$E_b = E_{sa}\alpha_0 L$で表される。入力フルーエンスE_{in}がE_bに達すると色素は透明になり、以後変調は行われない。



Ｆｉｇ．４－３　単一可飽和吸収体によるパルス成形。
入力光強度を上げると飽和点は前進する。

今、可飽和色素の飽和速度を速くするために入射光強度を高くすると、色素が透明になるまでの時刻も速くなる。この様子をＦｉｇ．４－３に示す。レーザー光の

ピークで飽和することが理想であるが、入力光強度を増加させると飽和時刻が早まってしまい、飽和点における出力光強度の瞬時値にはほとんど変化ない。速い飽和速度を得ることが出来ないばかりか、光強度絶対量の変化ΔＩ（以下「変調度」と呼ぶ）が劣化する。さらに悪いことに、実際の入力パルスにはＡＳＥやプリパルス等のノイズが含まれているので、可飽和色素はこれらにより主パルスに先だって飽和し、その機能をなさない。このため、圧縮率の増加に伴いパルス圧縮器の動作は著しく不安定になる。[3)]

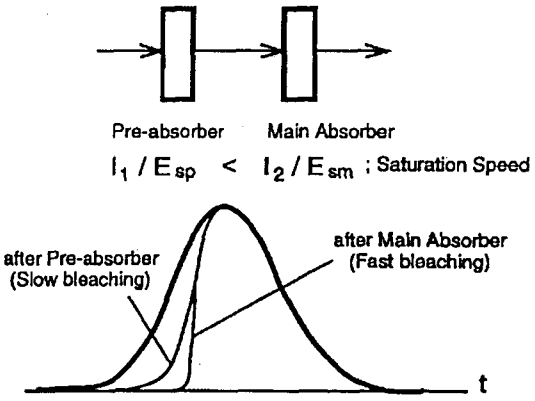
可飽和色素の飽和点を遅らせ高い変調度を得るには、飽和に必要なエネルギー$E_b = E_{sa}\alpha_0 L$を増加させれば良い。E_bを増加させるには、２つの方法がある。一つは、飽和フルーエンスE_{sa}を増加させる方法、もう一つは、色素の濃度を増加させて$\alpha_0 L$を増加させる方法である。前者のE_{sa}を増加させる方法では、（４－４）式により明らかなように飽和速度が遅くなってしまう。一方、後者の色素濃度を増加させる方法では、残留吸収が無視できなくなる。

これらの考察から、単一可飽和色素を用いた場合には、（４－６）式で示した飽和フルーエンスよりも残留吸収が最小パルス幅を決めるパラメータとなる。

４．２　２重可飽和吸収体を用いたパルス成形法の提案

光変調デバイスとして理想的な可飽和吸収体は①吸収エネルギー量が大きく深い変調が得られること、②高速に飽和することである。ここでは、２つの可飽和吸収体の組み合わせによって条件を満たした。

２重可飽和吸収体の概念図をＦｉｇ．４－４に示す。まず、高い飽和フルーエンスを持った「プレアブソーバー」によって、

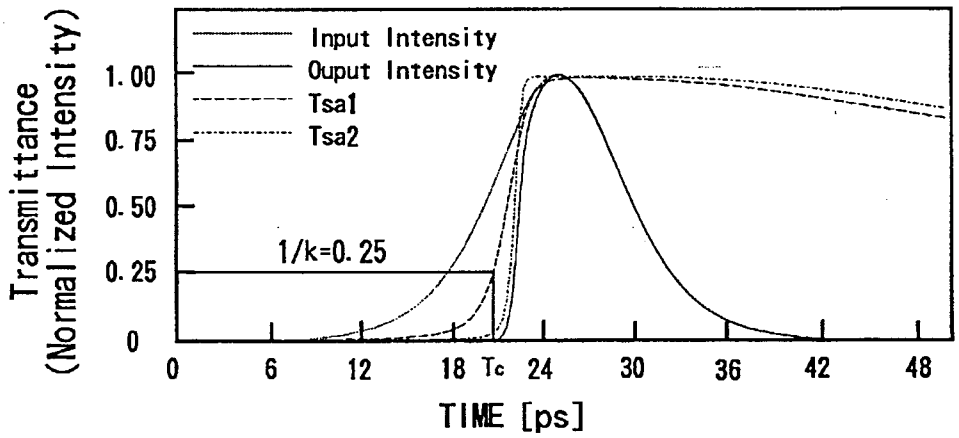


Ｆｉｇ．４－４　２重可飽和吸収体の概念図。飽和点と飽和速度を独立に制御する。

入力パルスのピーク付近まで光吸収させる。続いて、低い飽和フルーエンスを持つ「メインアブソーバー」によってパルスの立ち上がり時間を短縮する方法である。原理的には２つの異なる飽和フルーエンスを持つ色素が必要であるが、実際には個々の色素上のレーザー強度が異なるように集光系を工夫することによって、同一種の可飽和吸収体を用いて実効的に異なるI_{abs}／E_{sa}を得る。

プレアブソーバー、メインアブソーバーそれぞれのI_{abs}／E_{sa}の比をｋとする。透過率が十分低い２重可飽和吸収体にレーザー光が照射されると、初めはプレアブソーバーのみがゆっくりと飽和を始める。やがて、プレアブソーバーの透過率が上がり、次に、メインアブソーバーが飽和を始める。プレアブソーバーの透過率T_{sa1}がT_{sa1}＝１／ｋとなる時刻T_cを境に、メインアブソーバーのｄαＬ／ｄｔがプレアブソーバーのそれを上回り、急速に飽和に至る。

この様子を数値計算によりＦｉｇ．４－５に示す。



Ｆｉｇ．４－５　２重可飽和吸収体の透過率の時間変化。

T_{sa1}：プレアブソーバーの透過率、

T_{sa2}：メインアブソーバーの透過率、

入出力光強度を規格化して示す。

プレアブソーバーの透過率が１／ｋとなる時刻から

メインアブソーバーが飽和を始める。

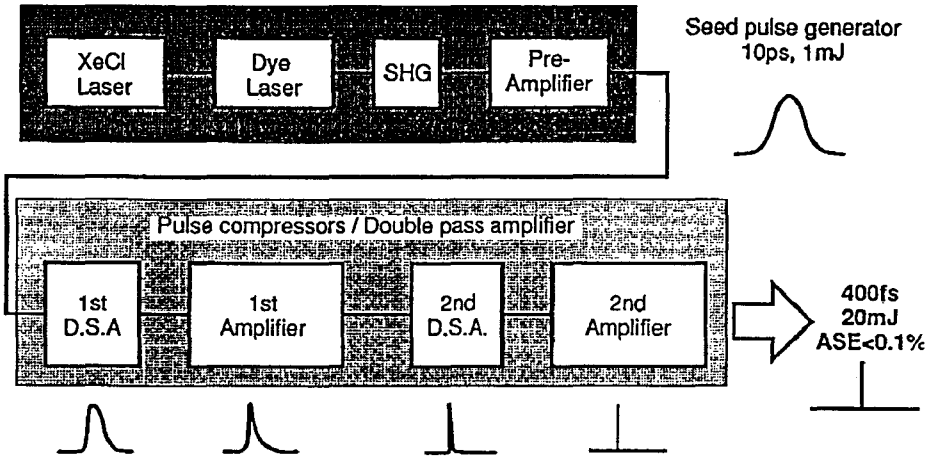
計算条件は、ｋ＝４、小信号透過率はプレアブソーバー、メインアブソーバーともに10^{-2}である。入力パルス波形はｓｅｃｈ^{2}型で、パルス幅１０ｐｓ、入力フルーエンスはプレアブソーバー上で１０ｍＪ／ｃｍ^{2}である。T_{sa1}、T_{sa2}はそれぞれ、プレアブソーバー、メインアブソーバーの透過率を示す。各物理量はその最大値で規格化してある。プレアブソーバー、メインアブソーバー透過後のパルスの立ち上がり時間は、それぞれ入力パルスの１／２．５、１／４．７に短縮されている。

メインアブソーバーへの集光率を上げてｋを大きくすると、見かけの飽和速度は速くなるが、メインアブソーバー飽和終了点におけるプレアブソーバーの透過率が低く、系全体のエネルギー損失が増加する。しかし、後続の増幅器の利得が十分高く、低い入力フルーエンスでも増幅器を強く飽和できる場合には、ｋ値を大きくして可飽和吸収体の飽和速度を上げることができる。このように、ｋの最適値は後続の増幅器の利得に依存する。以下の実験条件においてＧａｕｓｓ型パルスに対する最適値を計算した結果、ｋ＝４～１０で最も短いパルスが得られることが分かった。

４．３　色素レーザー、ＫｒＦレーザーにおけるパルス圧縮実験

４．３－１　レーザーシステムの構成

本内部パルス圧縮法を色素レーザー、ＫｒＦレーザー増幅システムに適用し、パルス圧縮実験を行った。パルス発生、圧縮システムの構成図をＦｉｇ．４－６に示す。本システムは、ＸｅＣｌ励起短共振器色素レーザー、波長変換装置、ＫｒＦレーザー増幅器列より構成される。

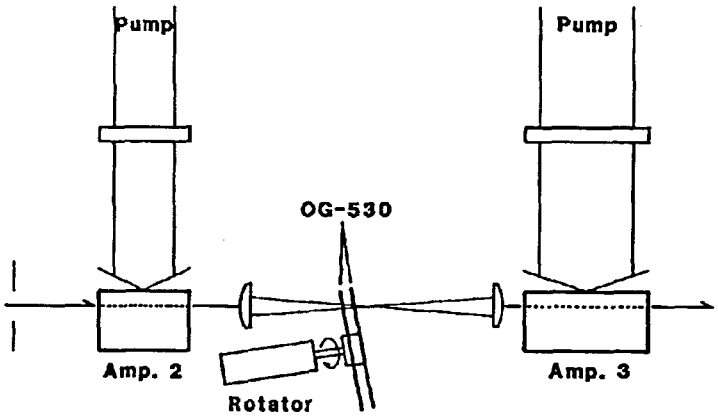


Ｆｉｇ．４－６　パルス発生、圧縮システムの構成図。
種パルスの発生にはＸｅＣｌ励起色素レーザーを用いた。
図中 D.S.A はＫｒＦレーザー用２重可飽和吸収体を示す。
プリアンプ以降の光学配置はＦｉｇ．４－９に示した。

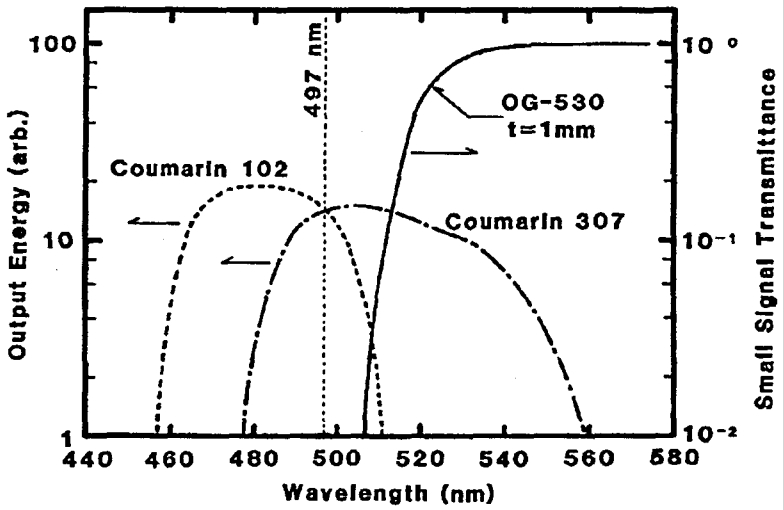
[1]　色素レーザー

図中の色素レーザー（ Lambda Physik FL-4000T ）[4] を用いて、ＫｒＦレーザーの倍波長（４９７ｎｍ）のピコ秒パルスを発生させた。この色素レーザーは３段の増幅器を備えている。可飽和吸収体には色ガラスフィルター（ Schott ＯＧ－５３０、厚さ　２ｍｍ）を用い、Ｆｉｇ．４－７に示すように第３段増幅器の手前に挿入した。色ガラスはモーターにより回転させ、温度上昇を防いだ。集光レンズはｆ

＝５０ｍｍである。



Ｆｉｇ．４－７　色素レーザー部における２重可飽和吸収体。
２枚の色ガラスフィルター（ＯＧ－５３０）を第３段増幅器前に挿入した。



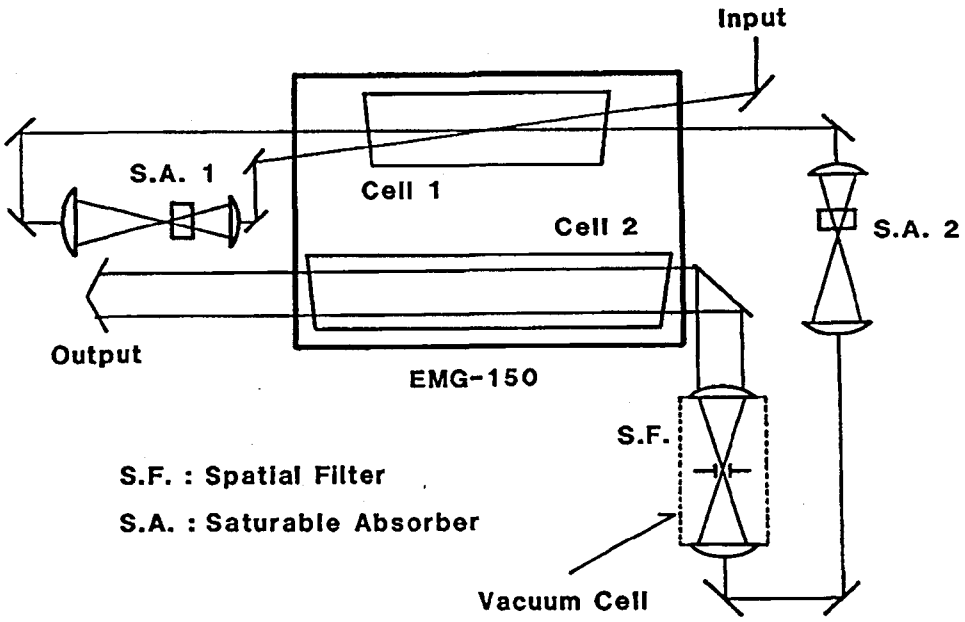
Ｆｉｇ．４－８　Ｃ１０２、Ｃ３０７色素の利得帯域と
ＯＧ－５３０色ガラスフィルターの吸収スペクトル。

Ｃ１０２とＣ３０７の２種の色素を３段の増幅器列に交互に用い、実効的な利得帯域を減じてＡＳＥを抑制した。同時に、Ｃ１０２の蛍光をＣ３０７に吸収させＯＧ－５３０がＡＳＥにより飽和するのを防いだ。Ｆｉｇ．４－８に紫外可視分光

光度計で測定したＯＧ－５３０フィルターの透過率曲線とＣ１０２、Ｃ３０７の出力スペクトルを示す。４９７ｎｍにおいて、２つの色素の利得低下はほとんど無い。利得帯域の制限により、レーザー出力を低下させること無く、ＡＳＥエネルギーを減少させることができる。

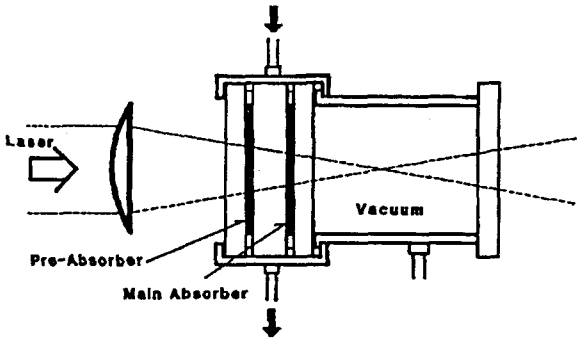
[2] ＫｒＦレーザー用２重可飽和吸収体

増幅器には放電型ＫｒＦレーザー（ Lambda Physik EMG−150EST ）を用いた。このレーザーは大小２つの放電チャンバーを持っており、これらは同一のサイラトロンで駆動される。２つの増幅器の小信号利得はそれぞれ、g_0L＝５．９、８．４である。Ｆｉｇ．４－９に示す光学配置においてプリアンプを含む合計利得は $e^{20.2}=6\times10^8$ 倍に達する。



Ｆｉｇ．４－９　ＫｒＦレーザー増幅器（ EMG−150 ）周辺の光学配置。
Ｃｅｌｌ１はダブルパス配置になっており、その第１パスはＦｉｇ．４－６に示したプリアンプ、第２パスは第１段増幅器に相当する。

ＫｒＦレーザー増幅システム中に用いた２重構造の可飽和色素セルをＦｉｇ．４－１０に示す。溶媒の非線形屈折率は大きいので溶媒長を０．５ｍｍに薄くしてある。プレアブソーバーとメインアブソーバーの厚さ、および溶液は同一である。２つの溶液は厚さ５ｍｍの合成石英板を隔てて配置され、前後の窓は厚さ３ｍｍの合成石英である。焦点付近で空気がプラズマ化することを防ぐ為に、色素セルの後方を真空排気した。



Ｆｉｇ．４－１０　ＫｒＦレーザー用２重可飽和色素セル。

２重可飽和色素セルは S.A.1 および S.A.2 の双方に用いた。空間フィルターは S.A.2 が増幅器２からのＡＳＥにより飽和するのを防ぐ為に用いた。S.A.1、S.A.2 共に、プレアブソーバーとメインアブソーバーの集光面積比ｋが１０：１となるようにレンズからの距離を調節した。

超短パルス光はスペクトル幅が広いので、集光レンズの色収差によってビーム半径方向に群速度分散（横分散）を生ずる。レンズの横分散によるパルスフロントの広がりΔＴ（ｒ）は

$$\Delta T(r) = \frac{-r^2}{2cf(n-1)}\left(-\lambda\frac{dn}{d\lambda}\right) \qquad (4-7)$$

で与えられる。[5] ここで、ｒは入射ビームの半径、ｆ、ｎはそれぞれレンズの焦点距離と屈折率、ｃは光速である。ΔＴ（ｒ）は焦点からレンズを見込む立体角 r^2/f に比例する。用いた合成石英レンズの分散は $dn/d\lambda = 6.5\times10^5\ m^{-1}$ であり、実験条件の $r = 5\times10^{-3}$m、$f = 0.15$m を代入すると $\Delta T = 86$ fs であるからパルス広がりは無視できる。

[3] サブピコ秒パルスの測定法

ＸｅＦの（Ｃ→Ａ）遷移（波長４８０ｎｍ）を用いた３光子蛍光法[6]を用いてシングルショット自己相関計測を行った。用いたガスの混合比はＡｒ／Ｋｒ／Ｆ$_2$＝７４／２５／１で全圧４ａｔｍである。レーザービームを半透鏡により２つに分離し、ｆ＝５００ｍｍレンズの焦点位置においてＸｅＦ中で衝突させた。集光レンズの横分散ΔＴは（４－７）式に実験条件ｒ＝５×１０$^{-3}$ｍ、ｆ＝０．５ｍを代入してΔＴ＝２６ｆｓである。数１００ｆｓのレーザーパルスに比べ十分小さく無視出来る。

発光空間は１０μｍ前後であるから、蛍光観測系の収差にも注意が必要である。[7]発光の拡大像はＳＩＴカメラを用いて観測し、画像解析装置（HAMAMATU C1330）により解析した。測定に必要なエネルギーはレーザービームの広がり角に強く依存する。本実験条件では、パルス幅１ｐｓの場合、１００μＪのオーダーであった。時間軸の校正は２つのビームの片方に薄い石英板を挿入して光学遅延を作り、挿入による発光の空間的シフトを観測して行った。

本測定では２つのパルスが同軸空間上で重ね合わされるので、バックグラウンドを伴った自己相関関数が観測される。パルスに構造やノイズがない場合、自己相関関数のピークとバックグラウンドの間のコントラスト比ＨはＮ次の自己相関関数の場合、次式で与えられる。

$$H = \frac{(2N)!}{2(N!)^2} \qquad (4-8)$$

今回のような３光子蛍光の場合、Ｈ＝１０である。

自己相関関数は入射パルス波形の対称性にかかわらず、必ず左右対称である。自己相関幅Δτからパルス幅ｔｐを求めるには、パルス波形を仮定し、その空間的広がりから時間幅を算出する。ｓｅｃｈ^{2}型パルスを仮定した場合、

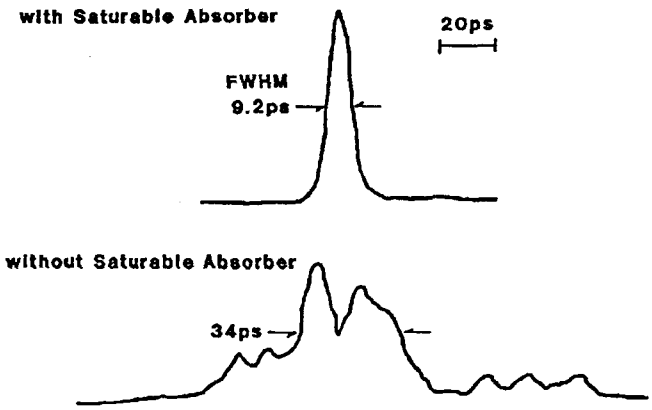
$$t_p = \frac{\Delta\tau}{1.29} \qquad (4-9)$$

である。

４．３－２　圧縮効果

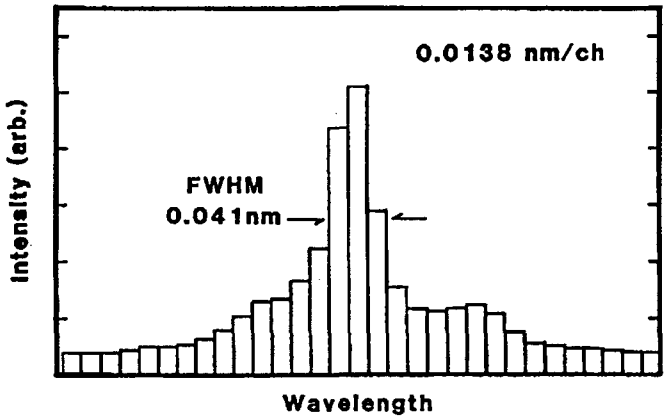
[1]　色素レーザー出力

ストリークカメラによって測定した２重可飽和吸収体の有無による出力波形の変化をＦｉｇ．４－１１に示す。構造を持った３４ｐｓのパルスは９．２ｐｓまで圧縮され、サテライトパルスも除去された。



Ｆｉｇ．４－１１　２重可飽和吸収体使用による
色素レーザー出力の変化。

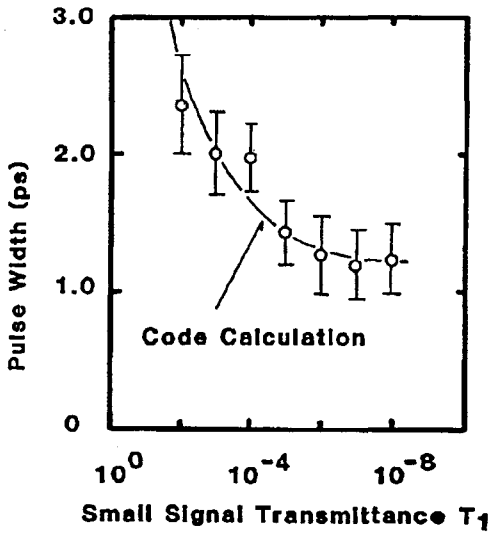
分光器（NIKON G500 Ⅲ）とＰＣＤ（Plasma Coupled Device）リニアイメージセンサーを用いて測定した圧縮後のパルスのスペクトルをＦｉｇ．４－１２に示す。図中、ＰＣＤの１チャンネルは０．０１３８ｎｍに相当する。スペクトル半値全幅$\Delta\lambda$は０．０４１ｎｍであり、周波数幅に換算すると$\Delta\nu = c \cdot \Delta\lambda / \lambda^2 = 5.0 \times 10^{10}$Ｈｚに相当する。周波数パルス幅積$\Delta\nu \cdot t_p$は０．４５であるからｓｅｃｈ^{2}型パルスを仮定した場合、フーリエ限界の１．４倍である。本色素レーザーの発振器は短共振器による緩和発振を用いている。この短パルス発生法の場合、出力パルスは多くの波束から構成されたノイズバーストであることが知られている。[8] しかし、２重可飽和吸収体を使用すると、時間的に波束の選択が行われ、位相の揃ったパルスが得られることが明かになった。



Ｆｉｇ．４－１２　色素レーザー出力のスペクトル。

[2]　ＫｒＦレーザー出力

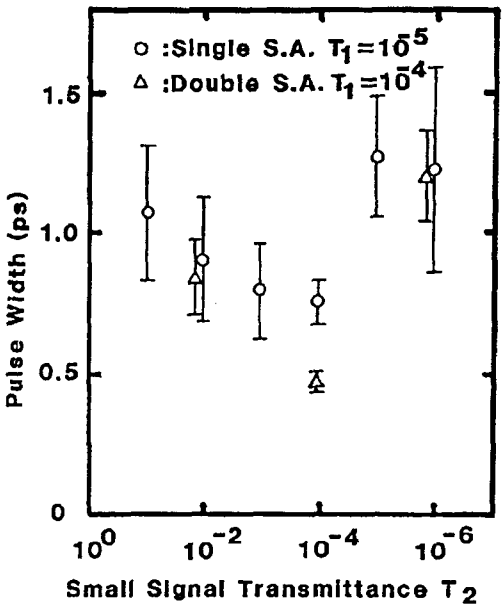
初めに、アクリジン濃度を変化させて出力パルスの変化を測定した。Ｆｉｇ．４－９のS.A.1の透過率Ｔ１の変化に対する出力パルス幅の変化をＦｉｇ．４－１３に示す。Ｔ１の減少につれてパルス幅は狭くなり、最短パルス幅１．２０ｐｓ（平均値）がＴ１＝10^{-7}で得られた。Ｔ１が10^{-5}以下の領域ではほぼ一定のパルス幅である。色素の残留吸収を考慮してＴ１＝10^{-5}を最適値とし、以後この値に固定した。この時のパルス幅は１．４３ｐｓである。Ｆｉｇ．４－１３中の実線は、ＫｒＦレーザー増幅器の飽和特性［（２－１６）式］、および、可飽和色素の飽和特性



Ｆｉｇ．４－１３　出力パルス幅のＴ１依存性。計算機コードによる結果を実線で示す。

［（３－１３）式］を用いて計算した出力パルス幅である。パルス波形にはｓｅｃｈ^{2}形を仮定し、入力パルス幅は１０ｐｓである。実験結果と良い一致が得られており、パルス圧縮器の動作は増幅器と可飽和色素の飽和特性により記述できることが分かる。

次にＦｉｇ．４－９のS.A.2の透過率Ｔ２を変化させて出力パルス幅変化を測定した。パルス幅のＴ２依存性をＦｉｇ．４－１４に示す。図中○は単一セル、△は２重セルを示す。Ｔ２に対して定性的に同様な傾向を示すが、最短パルス幅およびパルス幅の安定度は２重可飽和吸収体が勝る。Ｔ２＝１０$^{-4}$の最適条件における１７ショットの統計では４７５±４１ｆｓが得られ、安定度は２倍に向上した。Ｔ２を１０$^{-5}$以下まで減ずると、単一セル２重セル共に残留吸収の影響によって増幅器２の飽和が弱まり、パルス幅は広がり動作は非常に不安定になった。

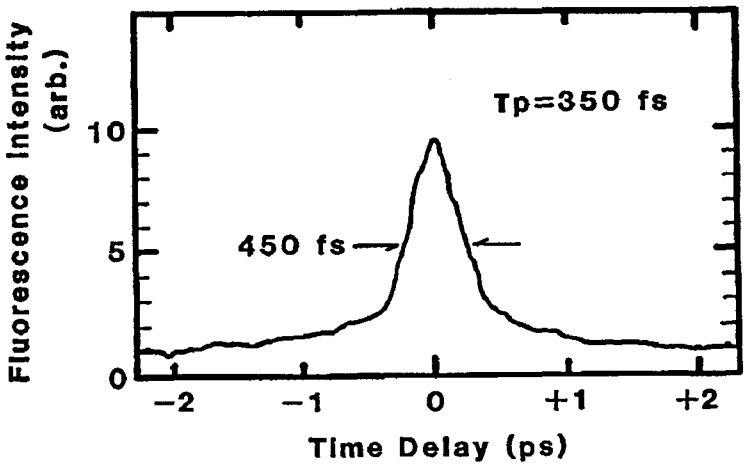


Ｆｉｇ．４－１４　２重可飽和色素セルと単一構造セルの比較。

Ｔ１＝１０$^{-4}$、Ｔ２＝１０$^{-4}$の時に最短パルスが得られた。この時の自己相関関数をＦｉｇ．４－１５に示す。得られた自己相関幅４５０ｆｓはｓｅｃｈ^{2}型パルスを仮定した場合（４－９）式よりパルス幅３５０ｆｓに相当する。自己相関関数のコントラスト比は理論値に等しい１０：１であった。Δν・ｔｐ値はｓｅｃｈ^{2}型フーリエ限界パルスの１．３倍であり、入力した色素レーザーと同等である。

本パルス圧縮システムでは、サブピコ秒パルスが透過する光学系を最終段増幅器の出力窓（厚さ５ｍｍのＣａＦ２）のみに限定される。この結果、光学素子内部の自己位相変調、群速度分散が軽減され、チャープを抑えたサブピコ秒パルスの発生

が可能である。



Ｆｉｇ．４－１５　ＫｒＦレーザー出力の３次の自己相関関数。

最短パルス条件で出力エネルギーをレーザー本体から３ｍ離れた点においたカロリーメーター（GEN−TEK　ED−200、空間制限角０．４ｍｒａｄ）によって測定した。出力エネルギーは２０ｍＪであり、その内、ＡＳＥ成分は１５μＪであった。エネルギー比１３３０、光強度比6×10^{7}のコントラスト比が得られた。レーザー光の出力フルーエンスは１０ｍＪ／cm^2である。レーザー光強度は５７ＧＷに相当し、ＫｒＦレーザー増幅器入力に対し、パワー増幅率1.9×10^{4}倍が得られた。

レーザー上準位からのエネルギー引き出し効率η_{ex}は

$$\eta_{ex} = \frac{E_{out}-E_{in}}{E_{st}} = \frac{E_{out}-E_{in}}{E_{s}g_{0}L} \qquad (4-10)$$

で与えられる。ここで、E_{in}、E_{out}はそれぞれ入出力フルーエンス、E_{st}は上準位の蓄積エネルギー$E_{st}=E_{s}g_{0}L$である。最終段増幅器のパラメータは$g_{0}L=$

８．４、E_s＝１．８ｍＪ／ｃｍ^2、E_{in}＝０．５ｍＪ／ｃｍ^2、E_{out}＝１０ｍＪ／ｃｍ^{2}であるから引き出し効率の実測値η_{ex}は０．６３である。一方、第２章で示したように、レーザー媒質の内部吸収により制限される蓄積型増幅器の最大引き出し効率η_{opt}は、ＫｒＦ増幅器（$\gamma = g_0/\alpha$＝１５）の場合η_{opt}＝７５％である。これらの値から、本実験における増幅器の飽和度、すなわち、上準位エネルギーの利用率ηを求めると

$$\eta = \frac{\eta_{ex}}{\eta_{opt}} = \frac{0.63}{0.75} = 0.84 \qquad (4-11)$$

となる。増幅器は強く飽和しており、上準位に蓄積されたエネルギーを十分有効に利用できていることが示された。

各部のパルス幅、出力を Ｔａｂｌｅ ４－１ にまとめる。

Ｔａｂｌｅ ４－１　システム各部におけるパルス幅およびピークパワー。

	パルス幅	エネルギー	ピークパワー
色素レーザー（４９７ｎｍ）	１０ｐｓ	１００μＪ	１０MW
第２高調波（２４８ｎｍ）	＜１０ｐｓ	３μＪ	３００ｋW
第１増幅器出力	１．５ｐｓ	５ｍＪ	３．３GW
第２増幅器出力	４００ｆｓ	２０ｍＪ (ASE < 0.1%)	５０GW

４．４　むすび

可飽和吸収体とレーザー増幅器の動的飽和を用いたパルス圧縮器の動作について考察した。新しいパルス変調法を提案し、これをＫｒＦレーザー・色素レーザーに応用して、ＡＳＥや周波数チャープを抑えたフェムト秒パルスを発生させた。

[1] 飽和速度の異なる２つの可飽和吸収体を組み合わせた高速の光変調を可能とする原理を提唱し、実験的にその有効性を明かにした。

[2] 色素レーザーに２重可飽和吸収体を導入し、パルス幅３４ｐｓのノイズバーストパルスをフーリエ限界の１．４倍の１０ｐｓパルスに圧縮した。

[3] ＫｒＦレーザー増幅システムにアクリジンを用いた２重可飽和吸収体を導入し、１０ｐｓの入力パルスから４００ｆｓのパルスを発生させた。サブピコ秒パルスが透過する光学素子を最終段増幅器の出力窓に限定し、自己位相変調や群速度分散を抑制した。

[4] フェムト秒パルス発生と同時に、エネルギー利用率８４％を得た。本パルス圧縮法が必要とする強い利得飽和は、同時に引き出し効率を改善することを示した。

[5] 光強度比6×10^{7}のコントラスト比を得た。強い利得飽和にもかかわらず、ＡＳＥを抑制できることを明かにした。

参考文献

[1] A.Takahashi, M.Maeda, and Y.Noda:
IEEE J. Quantum Electron.,vol.QE−20,pp.1196−1201(1984).

[2] H.A.Haus:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−11,pp.736−746(1975).

[3] Y.Taira and T.Yajima:Optics. Comm.,vol.29,pp.115−118(1979).

[4] Z.Bor and B.Racz:Appl.Opt.,vol.24,pp.1910−1913(1985).

[5] Zs.Bor:Opt.Lett.,vol.14,pp.119−121(1989).

[6] N.Sarukura, M.Watanabe, A.Endoh, and S.Watanabe:Opt.Lett.,vol.13,pp.996−998(1988).

[7] H.Nishioka, H.Kuranishi, K.Ueda and H.Takuma:Proc.LASERS'89,110−115,(1990).

[8] Zs.Bor and B.Racz:Appl. Opt., Vol.24,pp.1910−1913(1985).

第５章　高圧縮率後方ラマンパルス圧縮法

第２章で論じたように、ＫｒＦレーザーは上準位寿命が短く、レーザー上準位に蓄積されるエネルギーは励起エネルギーに比べ極僅かである。本章では、短パルスかつ高エネルギーレーザーシステムを構築するために、ナノ秒パルスで効率良く引き出されたＫｒＦレーザー光を、外部でピコ秒パルスに圧縮する方法を提案する。

ここで問題とする「圧縮」とは光強度の増倍を指しており、単にレーザーパルス幅を短縮する操作ではない。本方法で得られる１５０倍に及ぶ光強度の増倍率は、紫外域でこれまでに報告されているあらゆる方法の中で最も高い。

本章は、３つの節から構成される。

５．１節では、本パルス圧縮法の原理を示し、解析解を用いて圧縮率の定量評価を行う。

５．２節では、シミュレーションコードを用いて適用し得るパルス幅、出力波形の変化を調べ、解析解の適用範囲を明らかにする。

５．３節では、ＫｒＦレーザーパルスの圧縮実験を行い、原理の有効性を実証する。

５．１　過渡ラマンパルス圧縮法の提案とその理論的解析

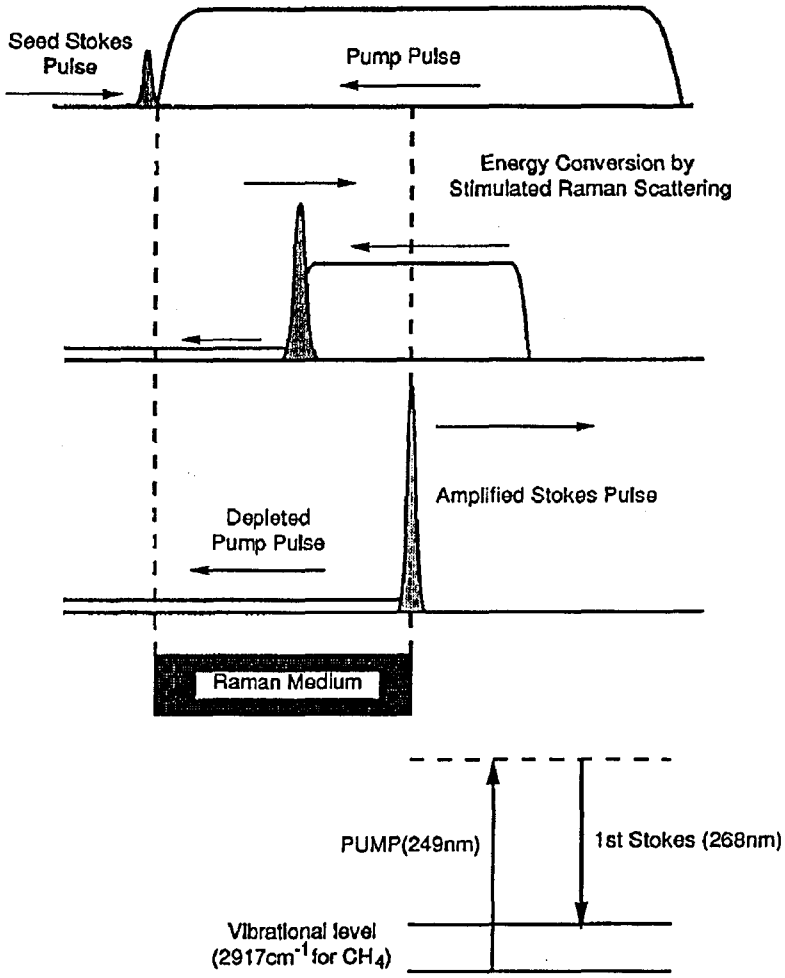
本節では、初めに、定常誘導ラマン散乱を用いた従来法[1)]の問題点を明らかにする。次いで、過渡誘導ラマン散乱を用いた新しいパルス圧縮法を提案する。本方法と従来法の圧縮限界を解析的手法を用いて比較する。

５．１－１　定常法（従来法）の原理と圧縮率の制限要素

ここでは、後方ラマン圧縮の原理について述べ、従来法の問題点を明らかにする。

[1] 圧縮原理

励起光の進行方向を基準として、励起光と同一方向に起こる散乱を前方散乱、反対方向に起こる散乱を後方散乱と呼ぶ。同様に、励起光と同じ方向に進むストークス光を前方ストークス光、反対方向に進む光を後方ストークス光と定義する。



Ｆｉｇ．５－１　後方ラマンパルス圧縮の原理図。

後方散乱では、Ｆｉｇ．５－１に示すように入射ストークス光（ Seed　Stokes

Pulse ）は励起光（ Pump Pulse ）の全ての部分と時間を異にしてラマン媒質中で相互作用する。時間空間的に長い励起光と短いストークス光を相互作用させると、長い励起光のエネルギーは短パルスストークス光に変換される。結果としてパルス幅は短縮され、光強度が増加する。これが後方ラマン圧縮の基本原理である。

実際には、光の速さをｃ、励起光のパルス幅をτ_pとしたとき、長さＬ

$$L = \frac{\tau_p c}{2n} \qquad (5-1)$$

のラマン媒質を用意し、励起光の先端がラマン媒質をまさに抜けでようとする時に後方１次ストークス光をラマン媒質に注入する。ここで、ｎは媒質の屈折率である。ストークス光のエネルギーが飽和を起こすに十分ならば、励起光はエネルギーを失い、ストークス光は増幅を受けて成長し、パルス圧縮が行われる。

紫外域では、ラマン媒質振動周波数ν_rに比べ励起光の周波数ν_pは十分高いので、ラマン変換に伴う損失$h\nu_r$の割合は小さく、高い効率が得られる。例えば、ＫｒＦレーザーを用いてメタン（CH_4：$\nu_r = 2917\ cm^{-1}$）を励起した場合、励起周波数$\nu_p = 40240\ cm^{-1}$に対してストークス周波数$\nu_s = 37324\ cm^{-1}$であり、光子エネルギーの９３％を利用することができる。

後方ラマン圧縮器は、励起光エネルギーを空間に蓄積したエネルギー蓄積型増幅器とみなすことが出来る。このため、一般のレーザー増幅器と同じように利得・吸収定数、飽和フルーエンス等のパラメータを用いて圧縮器の設計やその評価ができる。増幅器入力フルーエンスF_{in}とすると、出力フルーエンスF_{out}は第２章で述べたFrantz−Nodvikのモデルを用いて、

$$F_{out} = S_b \log_e\left\{\exp(G_1)\left[\exp\left(\frac{F_{in}}{S_b}\right)-1\right]+1\right\} \qquad (5-2)$$

で与えられる。ここで、G_1は１次ストークス光利得である。また、S_bは飽和フルーエンスであって

$$S_b = \frac{n_p + n_s}{\gamma_b c} \frac{\nu_s}{\nu_p} \sim \frac{2}{\gamma_b c} \qquad (5-3)$$

である。ここで、γ_bは後に述べる後方利得係数、cは光速、n_p、n_sはそれぞれ、励起光、ストークス光波長におけるラマン媒質の屈折率である。

[2] 圧縮率の制限要素

後方ラマン圧縮法で得られる最大光強度は

①ラマン媒質の吸収
②ラマン媒質、光学素子の光学的破壊
③後方２次ストークス光の発生

で制限される。①はレーザー増幅器と同様であり、第２章で述べた蓄積型レーザーの引き出し効率の式によって評価できる。ラマン媒質は励起光やストークス光に直接共鳴するエネルギー準位を持つ必要は無く、吸収は媒質の選択によって避けることができる。

②はレーザー光強度が高い場合、多光子吸収によって媒質の光分解が生ずることがある。特に、ピコ秒やフェムト秒ストークス光を用いる場合にその効果が著しい。また、ラマン媒質中に光を集光すると、焦点付近がプラズマ化することもある。これらの光学的破壊は、高い利得定数を持つラマン媒質を選択すると、励起光強度を下げることが出来るので回避できる。

③の後方２次ストークス光は後方１次ストークス光を励起光とたラマン散乱光である。その種光は自然散乱により生じ、誘導散乱によって成長する。レーザー増幅器のＡＳＥに相当する放射光である。（以下、特に断りの無い限り１次ストークス光、２次ストークス光とは後方１次ストークス光、後方２次ストークス光を示す。）発生した２次ストークス光は媒質中を伝播するにつれ、前方誘導散乱によって１次ストークス光のエネルギーを奪う。２次ストークス光強度の成長は指数関数的で、急速に１次ストークス光は減衰し消失する。

１次ストークス光強度の１％に相当する２次ストークス光発生に必要な利得をしきい利得G_{th}と呼び、

$$\exp(G_{th}) = \exp(25) = 7\times10^{10} \qquad (5-4)$$

の利得が必要である。しかし、１次ストークス光は圧縮によって高い光強度を持っているので、この高利得条件は容易に満たされる。このため、後方ラマンパルス圧縮器では２次ストークス光発生は不可避である。

２次ストークス光発生はラマン散乱の基本物理に基づく原理的に避けることができない、最も厳格な制限である。

[3] 前方－後方散乱利得の非対称性

後方２次ストークス光は後方１次ストークス光の前方散乱により成長することに注意を要する。

理想的な条件では後方散乱利得と前方散乱利得は等しい。しかし、実際には種々の条件で後方利得は前方利得よりも小さくなる。この前方－後方利得の非対称性が２次ストークス光をさらに発生し易くしている。以下、前方－後方利得の非対称性について考察する。

A．前方散乱利得

光強度I_pの励起光により定常的に励起されているラマン媒質を考える。光強度I_{s0}のストークス光を入力したとき、前方誘導散乱により増幅されるストークス光の位置zにおける光強度I_sは

$$I_s = I_{s0}\exp(G_f)$$
$$G_f = \gamma_f I_p z \qquad \text{（前方散乱）} \qquad (5-5)$$

である。ここで、G_fを前方散乱利得と呼ぶ。また、γ_fは前方散乱利得係数である。（５－５）式は小信号条件で成立し、励起光強度は時間・空間的に一定である

ことを仮定している。利得G_fは励起光強度に比例し、ストークス光強度I_sは伝播長に対して指数的に増加する。

前方散乱利得係数γ_fは

$$\gamma_f = \frac{2\lambda_s^3 N}{hc\pi\Delta\nu_r}\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{2\lambda_s^3 N T_2}{hc}\frac{d\sigma}{d\Omega} \qquad (5-6)$$

で与えられる。ここで、λ_sはストークス光の波長、hはプランク定数、cは光速、Nはラマン媒質の密度、$d\sigma/d\Omega$は微分散乱断面積である。$\Delta\nu_r$はラマン共鳴線の線幅であって、位相緩和時間T_2との間には

$$T_2 = \frac{1}{\pi\Delta\nu_r} \qquad (5-7)$$

の関係がある。

B．後方散乱利得の減少

ラマン利得は共鳴の強さ$1/\Delta\nu$に依存するので、ドップラー広がりや励起光の線幅等、線幅を広げる種々の効果が利得に影響を与える。これらの効果により後方散乱の利得が前方散乱の利得よりも小さくなる。

①ドップラー広がり

前方向に速度vで熱運動している散乱体を考える。散乱体が感じるドップラーシフトは励起光に対して$-\nu_p(v/c)$である。一方、発生するストークス光のシフト量は、前方散乱の場合$+\nu_s(v/c)$、後方散乱の場合$-\nu_s(v/c)$であるから、合計したシフト量は

$$\Delta\nu_d = -(\nu_p - \nu_s)\frac{v}{c} = -\nu_r\frac{v}{c} \qquad \text{（前方散乱）} \qquad (5-8)$$

$$\Delta\nu_d = -(\nu_p + \nu_s)\frac{v}{c} \qquad \text{（後方散乱）} \qquad (5-9)$$

である。$\nu_r << \nu_p$であるから、前方散乱におけるドップラーシフトは無視できる。一方、後方散乱のシフト量は$\nu_p + \nu_s \sim 2\nu_p$であるので特に紫外域で大きい。例えば、$\nu_r = 3000\,cm^{-1}$の散乱媒質をＫｒＦレーザーによって励起した場合、シフト量の前方・後方比は１：２６である。$\Delta\nu_r$が散乱媒質の$\Delta\nu_d$に比べ十分小さい時には、後方利得は前方利得の１／２６に減少する。しかし、ガス圧力を上昇させるに連れて分子間の衝突が頻繁になり、平均自由行程が減少するのでドップラー広がりは小さくなる。この効果を Dicke narrowing [2] と呼ぶ。

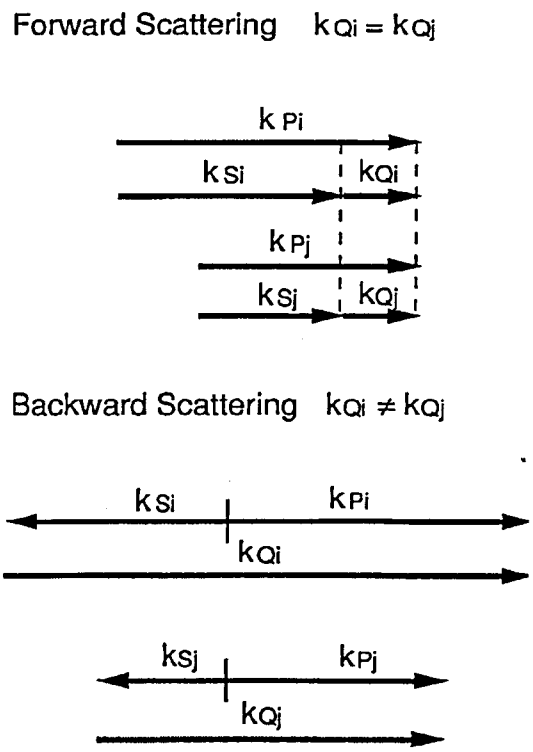
以上のことより、$\Delta\nu_r$が小さく低圧の場合には、ドップラー効果が大きな前方・後方利得比をもたらす。

②励起光線幅の広がり

簡単の為に、ここでは励起光の広がりを励起レーザーの縦モードの数として取り扱う事にする。

散乱分子の空間的な分極の位相をＦｉｇ．５－２のように波数ベクトルk_Qで表現すると、前方散乱ではk_{pi}なる励起光とk_{si}なるストークス光によって励起されるk_{Qi}と、k_{pj}とk_{sj}（$i \neq j$）によって励起されるk_{Qj}の間には$k_{Qi} = k_{Qj}$の関係が常に成り立つ。故に、全ての励起光モード、ストークス光モードは同一位相の分子振動モードを励起する。励起される分子振動の振幅は単色光の場合と同じである。故に、励起光の線幅は前方利得に影響を与えない。

自然散乱光としてストークス光



Ｆｉｇ．５－２　前方散乱と後方散乱の位相整合条件。

が発生する時には、ストークス光のモード間隔は常に励起光のそれに等しいので、上記の仮定は現実に成り立つ。一方、外部からストークス光を注入した場合にはこの仮定は満足されない。しかし、励起光とモードマッチするストークス光成分のみが選択的に増幅されるので、十分な利得で増幅を受けた後のストークス光は励起光モードに対応したモードが支配的となり、以後の増幅では自然散乱光を注入した場合と同等になる。この現象を「位相の引き込み」（Phase Pulling）と呼ぶ。[3]結局、前方散乱利得は励起光線幅にほとんど依存しない。

一方、後方散乱では $i \neq j$ の時には常に $k_{Qi} \neq k_{Qj}$ であるから、励起光のモード数Nに等しい数に分割された複数の分子振動のモードが生ずる。個々の分子振動モードの振幅は単一の場合の1／Nに減少してしまうため、ラマン利得は励起線幅に反比例して低下する。ラマン線幅 $\Delta\nu_r$ が励起光のモード間隔よりも広い場合には、1つの分子振動のモードが複数の励起光と相互作用するので、実効的な利得減少の割合は $\Delta\nu_r/(\Delta\nu_p+\Delta\nu_r)$ となる。[4]

まとめると、励起線幅の広がりは、後方散乱利得のみを低下させる。

③励起光強度の時間的変化

励起光強度 I_p は一般に時間の関数 $I_p(t)$ である。後方散乱ではストークス光は時間的に励起光の全ての部分と相互作用する。故に、後方利得は励起光強度の時間積分値 $\int I_p(t)\,dt$ に比例し、励起光パルスの波形に依存しない。

一方、前方散乱では励起光とストークス光は重なりあって伝播するので、利得は励起光パルスの形に依存し、時間の関数である。励起光が瞬時的に大きな光強度を持つならば、利得の最大値は平均値よりも遙かに大きくなる。後方散乱は蓄積型増幅に相当するので、第4章で述べたような利得飽和によってパルスの先鋭化が生じる。また、モードビート等による1次ストークス光の時間的構造もしばしば2次ストークス光発生の原因となる[5]。

以上のように、前方－後方散乱利得の比は①ドップラー広がり、②励起光の線幅、③励起光の時間的変化により大きくなる。前方散乱利得 G_f に対する後方利得の減少の割合 G_b/G_f は、励起光パルスを矩形とした場合、

$$\frac{G_b}{G_f} = \frac{\gamma_b}{\gamma_f} = \frac{\Delta\nu_r}{\Delta\nu_r + \Delta\nu_d + \Delta\nu_p} = \frac{\Delta\nu_f}{\Delta\nu_b} \qquad (5-10)$$

となる。ここで、$\Delta\nu_f$、$\Delta\nu_b$はそれぞれ、前方、後方散乱の共鳴線幅の実効線幅である。

ここで、後方散乱の実効横緩和時間T_{2b}を

$$T_{2b} \equiv \frac{1}{\pi\Delta\nu_b} = \frac{1}{\pi(\Delta\nu_r + \Delta\nu_d + \Delta\nu_p)} \qquad (5-11)$$

と定義する。T_{2b}は常に$T_{2b} < T_2$である。

5．1－2　過波後方ラマン圧縮法の提案

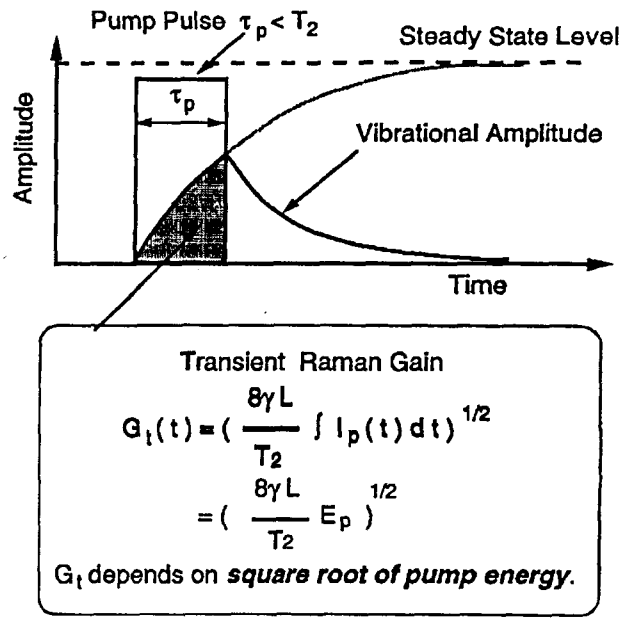
定常誘導ラマン散乱では、前述のように前方散乱利得が大きくなり２次ストークス光を容易に発生させる。しかし、過渡誘導ラマン散乱を利用すると２次ストークス光抑制でき、高い圧縮率を得ることが出来る。

[1]　過波誘導ラマン散乱

初めに、励起光パルス幅τ_pが横緩和時間T_2よりも短い場合の誘導ラマン散乱についてまとめ、２次ストークス光抑制法を考察する。

分子集団系をコヒーレントに励起しても個々の分子の位相は分子衝突により進んだり遅れたりする。ある時間経過した後の集団系の位相はランダムになり、系全体からのコヒーレントな散乱は観測されなくなる。この時間がすでに述べた位相緩和時間T_2である。エネルギーの損失を伴わない緩和過程なので、縦緩和に対して横緩和とも呼ばれる。分子系の帯域$\Delta\nu_r$が広いほど個々の分子の単位時間あたりの位相ずれが大きいので、T_2は短くなる。これまで仮定してきた条件、励起光パルスがT_2に比べ十分長い場合では、コヒーレントな励起と位相緩和が釣り合っており、コヒーレントな分子振動の振幅は一定の定常値を保つ。

一方、励起光の時間幅がＴ２よりも短い場合の誘導ラマン散乱を過渡誘導ラマン散乱（Transient Stimulated Raman Scattering：ＴＳＲＳ）と呼ぶ。周波数空間で考えると、励起光の周波数スペクトルが分子系の共鳴スペクトルよりも広い状態である。分子系が感ずる励起光スペクトルは$\Delta\nu_r = 1/T_2$であって、分子振動はその帯域を超えて高速応答できない。このため、散乱されたストークス光は励起光パルスに対して時間的に遅れる。分極振動は励起光の一部のスペクトル成分により励起されるから、定常散乱に比べ分子振動の振幅は小さくゆえに利得も低い。



Ｆｉｇ．５－３　過渡誘導ラマン散乱。

時間空間で見た過渡ラマン散乱の概念図をＦｉｇ．５－３に示す。ここでは簡単の為に励起光パルスを矩形とした。励起光を印加すると、分子振動はその帯域幅で決まる立ち上がり速度で振幅を増してゆき、時間がＴ２に近づくと位相緩和の影響から振幅は一定値に漸近する。励起光のパルス幅が短いならば、散乱に寄与する分子振動の振幅・時間積は図中網掛けで示した大きさに限定される。

以下の議論において、「定常状態」および「過渡状態」とは、励起光、ストークス光電界の振幅に対してこれら光電界により誘起される分子振動の振幅の追従性についての表現を指す。光強度や利得が時間的に変化していても、分子振動が光電界に時間遅れなく追従している場合には「定常状態」と表現することにする。

過渡誘導ラマン散乱の解析解は R.L.Carman[6] ら によって与えられている。ただし、以下に示す幾つかの仮定を含んでいる。

a) 前方散乱のみを考える。

b) レーザーパルスはＴ２より十分短い。

c) 光は励起光とその自然散乱から立ち上がるストークス光のみである。
高次ストークス光や反ストークス光は考慮しない。

d) 励起光の損失は無視できる。励起光強度は伝播につれて変化しない。

e) 励起光は位相構造の無いフーリエ限界パルスである。

f) １次元空間を平面波が伝播する。

この仮定のもとで解かれたＴＳＲＳの利得[7)8)9)10)] $G_T(t)$ は $G_T > 10$ 以上の高利得領域で

$$G_T(t) \sim 2\sqrt{\frac{2G_{SS}\tau_P}{T_2}} \sim \left(\frac{8\gamma L}{T_2}\int_0^t I_P(t)\,dt\right)^{1/2} \qquad (5-12)$$

である。ここで、G_{ss} は定常状態における利得、τ_p、I_p はそれぞれ、励起光のパルス幅およびその強度である。

上式が表しているＴＳＲＳの利得の特徴は

a) 常に $G_T < G_{ss}$ である。

a) 時間の関数である。

b) 励起光フルーエンスの平方根に比例する。

c) 利得の最大値は励起パルスの形状に依存しない。

d) Ｔ２に依存しない。（γ_f / T_2 はＴ２に無関係。）

等である。

増幅器の帯域はその利得の増加につれて減少する（以下、gain narrowing と呼ぶ）

ので、定常散乱からＴＳＲＳに移るパルス幅はG_{ss}の関数である。いま、ローレンツ型の利得スペクトルＧ（ν）を

$$G(\nu) = \frac{1}{1+x^2} \qquad (5-13)$$

とする。半値幅はｘ＝１である。一方、利得Ｇの増幅器における半値幅ｘは

$$\exp\left(\frac{G}{1+x^2}\right) = \frac{1}{2}\exp(G) \qquad (5-14)$$

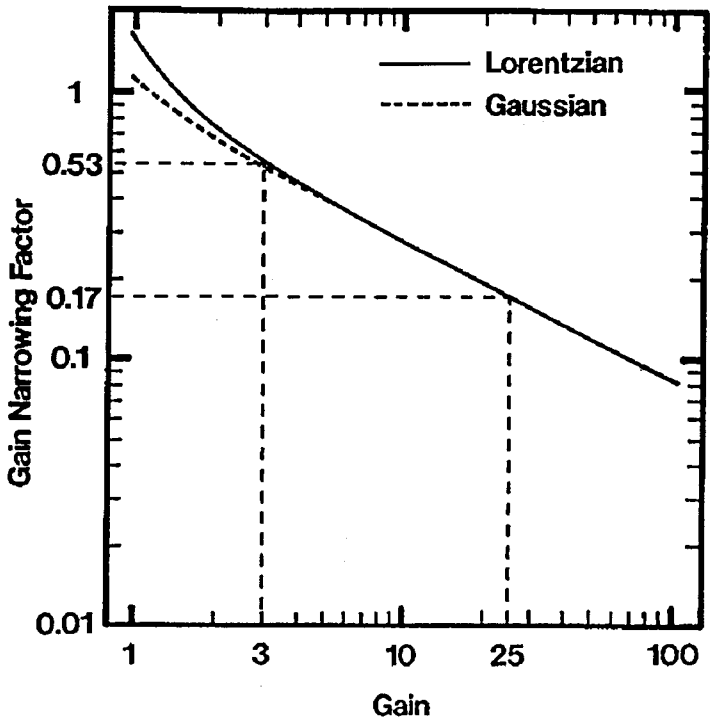
であるから、ｘについて解くと

$$x = \sqrt{\left(\frac{G}{\log_e\frac{1}{2}-G}-1\right)} \qquad (5-15)$$

である。同様にＧａｕｓｓ型では

$$x = \sqrt{\log_e\left(\frac{G}{\log_e\frac{1}{2}-G}\right)} \qquad (5-16)$$

である。gain　narrowingの数値計算結果をＦｉｇ．５－４に示す。しきい利得G_{th}＝２５の場合には、実効帯域はＧ（ν）の１／６に減少している。このため、励起光パルス幅τ_pが６T_2以下の時間領域では過渡状態と考えることができる。



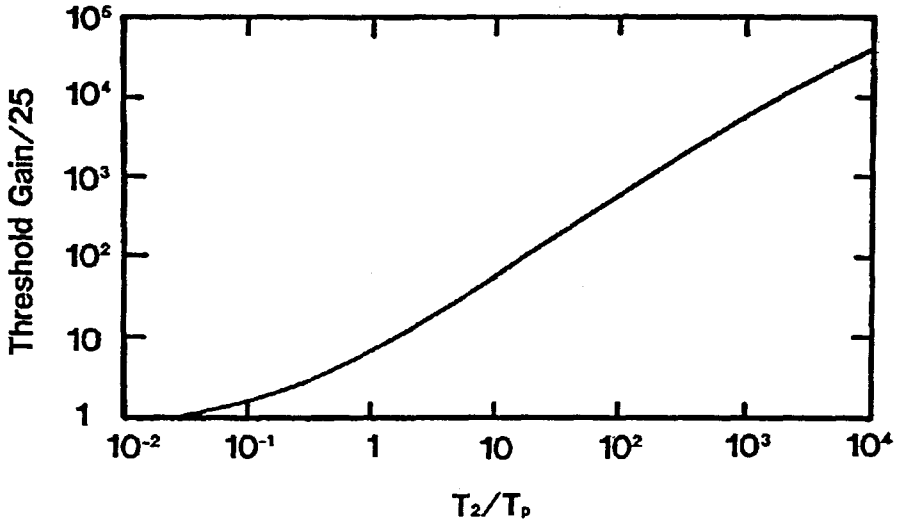
Ｆｉｇ．５－４　増幅器実効帯域幅の利得依存性。
(gain narrowing factor)

ストークス光発生に必要な利得の励起光パルス幅τ_p依存性は B.Bobbs[11]らによって数値計算されており、

$$\gamma_f I_p L = 25 + 131.5 \frac{T_2}{\tau_p} \qquad (5-17)$$

の近似式により与えられている。この関数形をＦｉｇ．５－５に示す。ここで、パルス波形はＧａｕｓｓ型を仮定している。定常からＴＳＲＳへの移行点、すなわち、$\gamma_f I_p L = 2G_{th} = 50$になる点は$\tau_p = 5.3T_2$であり、gain narrowing を用いた見積とほぼ一致する。$\tau_p \leq T_2$の領域では、必要なI_pはτ_pに反比例する

ので、完全な過渡状態とみなすことができる。



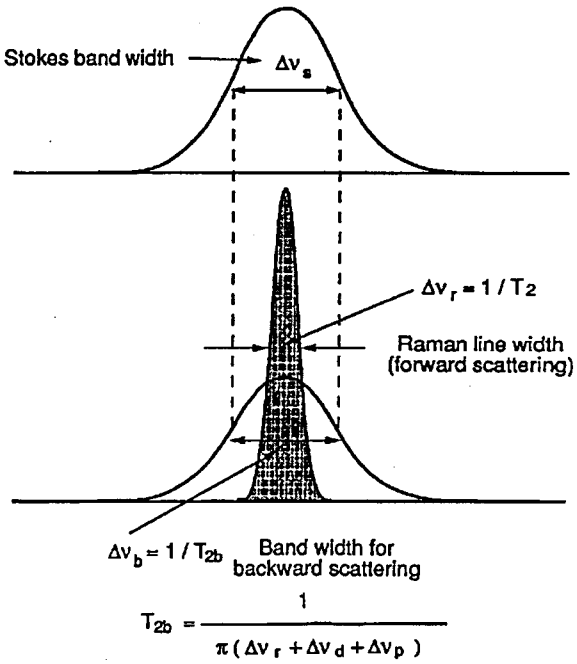
Ｆｉｇ．５－５　励起パルス幅とストークス光しきい利得。

[2]　２次ストークス光の過渡的抑制と１次ストークス光の定常増幅

上記の考察から、後方１次ストークスパルス幅τ_{1s}を$\tau_{1s} \leqq T_2$とすれば、後方２次ストークス光は過渡状態となって抑制される。

一方、後方散乱では利得帯域幅を励起光線幅$\Delta\nu_p$によって広げることにより、T_2以下のパルス幅を持った１次ストークス光を増幅出来る。前方・後方散乱の利得帯域の概念図をＦｉｇ．５－６に示す。ここで、むやみに利得帯域を広げるとそれに反比例して利得が減少するので、利得帯域の最適値を求める必要がある。通常の圧縮器では、１次ストークス利得G_1は$G_1 = 3 \sim 5$程度で用いられるから gain narrowing の影響は２次ストークス光発生の場合に比べ小さい。Ｆｉｇ．５－４に示したように$G_1 = 3$の場合の利得幅の減少割合は０．５３である。

さらに、パルス圧縮に伴う利得飽和によっても後方散乱の利得帯域は広がる。$\Delta\nu_r$は均一広がりであるが、励起線幅$\Delta\nu_p$およびドップラー広がり$\Delta\nu_d$は不均一広がりである。$\Delta\nu_p+\Delta\nu_d$が$\Delta\nu_r$に比べて大きい場合には、利得帯域全体を不均一広がりと見なすことができる。この時、利得の飽和フルーエンスは、利得の高いスペクトル中心部で低く、利得の低い周辺部で高くなる。このため、利得飽和はスペクトル中央部で著しく、飽和によって利得帯域は増加する。この様子をＦｉｇ．５－７に示す。（注：この広がり効果は均一広がりを持つ媒質のスペクトル測定において観測される saturation broadening とは異なる。）この飽和による広がり効果によって上記 gain narrowing 効果を相殺することができる。



Ｆｉｇ．５－６　前方・後方誘導ラマン散乱の利得と利得帯域。

まとめると、１次ストークス光のパルス幅τ_{1s}が$\tau_{1s} \leqq T_2$の範囲では、後方２次ストークス光の発生は過渡状態となり、その利得は（５－１２）式で与えられる低い値に抑えられる。一方、後方１次ストークス光利得帯域は

a. 利得線幅$\Delta\nu_p$による帯域増加

b. 弱い gain narrowing 効果

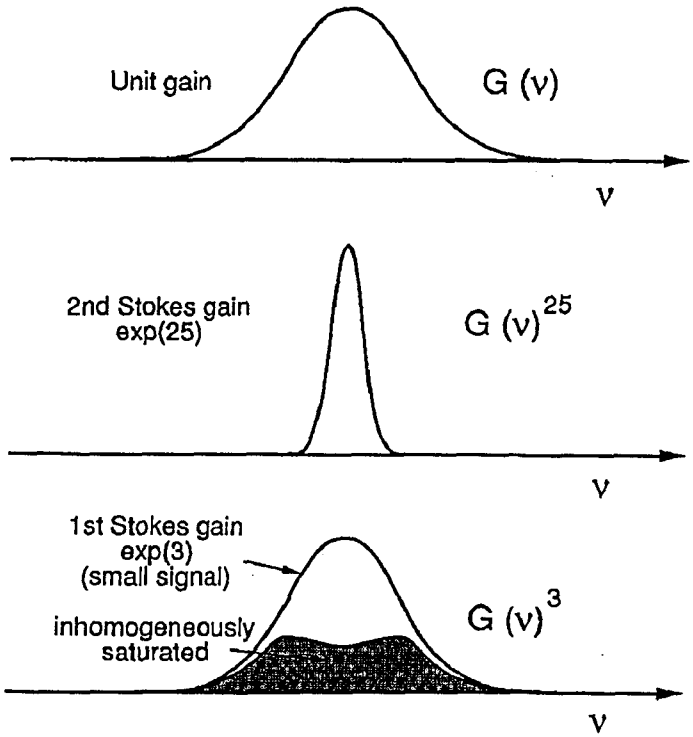
c. 飽和による帯域の増加

により、２次ストークス光によりも十分広く、$T_{2b} \leqq \tau_{1s}$の範囲まで定常増幅可能である。

従って、本パルス圧縮法の適用範囲は

$$T_{2b} \leqq \tau_{1s} \leqq T_2 \qquad (5-18)$$

である。



Ｆｉｇ．５－７　Gain Narrowing による２次ストークス光利得帯域の減少と飽和による１次ストークス光利得帯域の増加の概念。

図中最上段は利得単位利得のスペクトル形状関数Ｇ（ν）を表す。中段に２次ストークス光発生に要する利得 exp(25) のスペクトル形状Ｇ（ν）^{25}、下段に１次ストークス光利得 exp(3) のスペクトル形状Ｇ（ν）^{3}を示す。

後方１次ストークス光利得は不均一広がりをしており、その実効帯域は利得飽和により広がる。

5．1－3　圧縮限界の定量評価

定常法と過渡法の圧縮限界を定量的に求め、過渡法の有効性を定量的に示す。

[1]　圧縮率の定義

初めに圧縮率を定義する。励起光パルス幅をτ_p、出力１次ストークス光パルス幅をτ_{1s}としたとき、時間圧縮率kは

$$k = \frac{\tau_p}{\tau_{1s}} \qquad (5-19)$$

である。パルス圧縮の目的はパルス幅の短縮ではなく光強度の増倍であるから、時間圧縮率kに対して 光強度増倍率M を次のように定義する。

$$M = \frac{I_{1s}}{I_p} = \frac{1}{k\eta} \qquad (5-20)$$

ここで、I_p、I_{1s}はそれぞれ、励起光および出力１次ストークス光強度、ηは変換効率である。以下、特に断りの無い限り「圧縮率」とは光強度増倍率Mを指す。

[2]　定常法の圧縮率

初めに定常圧縮における圧縮率を求める。後方１次、２次ストークス光の利得をそれぞれG_1、G_2とすれば、その比は（５－１０）式を用いて

$$\frac{G_1}{G_2} = \frac{\gamma_b I_p L}{\gamma_f \overline{I_{1s}} L}\left(\frac{\nu_{1s}}{\nu_{2s}}\right)^3 = \frac{T_{2b}}{T_2}\ \frac{I_p}{\overline{I_{1s}}}\left(\frac{\nu_{1s}}{\nu_{2s}}\right)^3 \qquad (5-21)$$

ここで、$\overline{I_{1s}}$ は増幅器中における１次ストークス光の平均強度である。

$\overline{I_{1s}}$ を簡単に見積もるために、出力ストークス光強度に対して入力ストークス

光強度が無視でき、かつ増幅器が強く飽和している場合を考える。後方利得が大きく、飽和している増幅器（圧縮器）中では実際にこの条件が満たされる。エネルギー保存則から、増幅器内部のある点におけるストークス光強度は励起光がそれまでに失ったエネルギーに光子エネルギーの利用率ν_s/ν_pを乗じたものに等しい。増幅器内部のストークス光強度は伝播距離に対して近似的に直線増加するから、その平均値は$\overline{I_{1s}}$

$$\overline{I_{1s}} \sim \frac{I_{1s}}{2} = \frac{I_p M}{2} \qquad (5-22)$$

である。紫外域であるので$\nu_{1s}/\nu_{2s} \sim 1$と置き（５－２２）を用いて（５－２１）を書き直すと

$$\frac{G_1}{G_2} = \frac{2}{M}\frac{T_{2b}}{T_2} \qquad (5-23)$$

これをMについて解いて

$$M = 2\frac{T_{2b}}{T_2}\frac{G_2}{G_1} \qquad (5-24)$$

を得る。$\Delta\nu_p$や$\Delta\nu_d$は実際には零にできないので、通常T_{2b}/T_2の最小値は２程度である。２次ストークス光の発生には$G_2 = G_{th} \sim 25$のしきい利得を要するから、定常法の圧縮限界は

$$M \sim \frac{25}{G_1} = 8.3\ (G_1 = 3) \qquad (5-25)$$

で与えられる。１次ストークス利得を$G_1 = 3$とした時、圧縮率は８．３に制限されることが分かる。G_1を減ずれば見かけ上圧縮率は上げられるが、高い入力ストークス光強度が要求されるので多段の前置増幅器が必要である。実用的な利得範囲

$G_1 \geqq 3$では、圧縮率は１０倍に満たないことは明かである。

[3] 過渡法の圧縮率

１次ストークス光パルス幅τ_{1s}が$T_{2b} \leqq \tau_{1s} \leqq T_2$の場合を考える。１次ストークス光は定常散乱されるから、その利得は上記と同様に$G_1 = \gamma f I_p L$である。一方、２次ストークス光利得G_2は過渡誘導ラマン散乱の利得（５－１２）式によって与えられる。$\nu_s / \nu_p \sim 1$を仮定し、G_1とG_2の関係

$$G_1 = \frac{T_{2b}}{4\tau_p \eta} G_2^2 \qquad (5-26)$$

を得る。ここで、$L = \tau_p / 2c$を用い、また、１次ストークス光強度の時間積分値に

$$\int I_{1s} dt = \frac{\eta \tau_p I_p}{2} \qquad (5-27)$$

を用いた。定常増幅可能なもっとも短い１次ストークス光パルス幅、$\tau_{1s} = T_{2b}$を代入して圧縮率Mを求めると

$$M = \frac{\eta \tau_p}{T_{2b}} = \frac{G_2^2}{4G_1} \qquad (5-28)$$

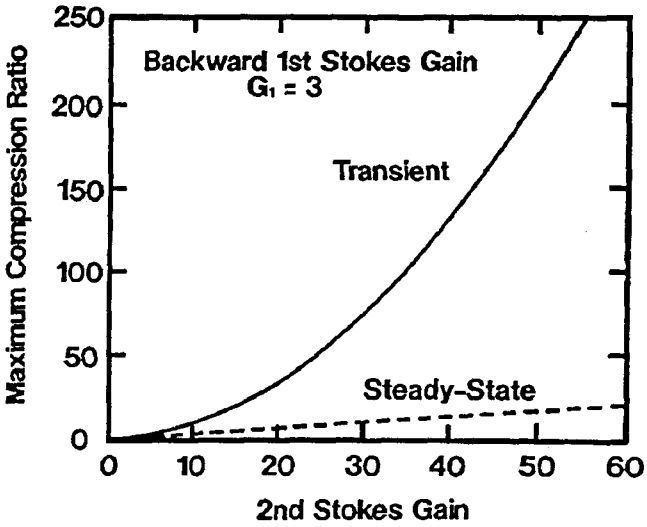
となる。MはI_p、I_{1s}やT_2に依存しない。

Mを２次ストークス利得G_2の関数として計算した結果をＦｉｇ．５－８に示す。１次ストークス利得G_1は３である。図中実線が過渡ラマンパルス圧縮の場合であり、比較の為に定常法の圧縮限界を点線で示す。過渡法では、$G_2 = 25$のしきい値条件で５２倍の圧縮率が得られる。

特に重要な点は、過渡法の圧縮率がG_2の２乗関数で増加することである。何らかの方法で２次ストークス光を減衰させ、しきい値に達するまでに必要なG_2を増

加できれば非線形に高い圧縮率が得られる。一方、定常法では関数が線形であるので、圧縮率の増加はわずかである。

定常法では２次ストークス光利得は１次ストークス光強度の瞬時値で与えられる。このため、１次ストークスの光強度が一定で無い場合に２次ストークス光は発生し易くなり、実際に得られる圧縮率は（５－２５）式よりも低い。これまでの定常法の実験的報告は２～５倍程度であって上記見積とよく一致する。一方、過渡法では２次ストークス利得は１次ストークス光波形に影響を受けない。その上、パルスの立ち上がり時間は増幅器の利得帯域によって制限されるので、パルスの先鋭化や変調は起こらないものと考えられる。



Ｆｉｇ．５－８　２次ストークス光しきい利得と圧縮率。

定常法と過渡法の比較をＴａｂｌｅ　５－１にまとめておく。

Ｔａｂｌｅ　５－１　定常法と過渡法の比較

	定常法	過渡法
２次ストークス利得	$G_2 = \gamma I_{1S} L$ １次ストークス光強度に比例	$G_2 = \left(\frac{8 \gamma L}{T_2} \int_0^t I_{1S}(t)\, dt \right)^{1/2}$ １次ストークス光フルーエンスの平方根に比例
光強度圧縮率	$M = \frac{G_2}{G_1}$ （G2に線形）	$M = \frac{G_2^2}{4 G_1}$ （G2の２乗に比例）
ストークス波形の変化	増幅により先鋭化 ２次ストークス光の発生を助長	フーリエ限界増幅 出力パルスに変調を生じない

５．１－４　ラマン媒質の選択

これまでの議論では、ラマン媒質に要求される特性は１次ストークスパルス幅 τ_{1s} によりも長い T_2 であった。

$T_{2b} < \tau_{1s}$ の要求を満たす為に励起光スペクトル幅を広げると、同時に後方利得も減少する。利得の減少を補うために励起光強度を増加させると、励起光の前方散乱光、すなわち、前方１次ストークス光が発生する。前方１次ストークス光は励起光のエネルギーを奪うのみでなく、後方散乱によって後方２次ストークス光を増幅する励起光ともなるので、その抑制は必須である。

ここでは、前方１次ストークス光利得をそのしきい値以下に抑える為に必要な T_2 の範囲を検討する。あわせて、短パルスＫｒＦレーザーに適したラマン媒質の選択を行う。

前方１次ストークスを抑制する為には、その利得 G_{1f} をしきい利得以下

（$G_{1f}=\gamma_f I_p L<25$）に保たれなければならない。このため、後方１次ストークス光の利得G_1に対するG_{1f}の比率Rは次式を満たす必要がある。

$$R = \frac{T_2}{T_{2b}} = \frac{G_{f1}}{G_1} < \frac{25}{G_1} \qquad (5-29)$$

圧縮器の変換効率を高くとるために、小信号利得G_1を圧縮器動作時における飽和利得G_{1L}に比べて数倍高く設定する必要がある。ここで、変換効率ηはG_1、G_{1L}を用いて

$$\eta = \frac{I_s \tau_s}{I_p \tau_p} = \frac{G_1 - G_{1L}}{G_1} \frac{\nu_s}{\nu_p} \qquad (5-30)$$

で与えられる。$\nu_s / \nu_p \sim 1$を仮定した時、$\eta = 0.5$を得るためには、G_1は少なくともG_{1L}の２倍必要である。$G_{1L} > 3$を必要条件とすれば、Rの最大値は

$$R = \frac{25}{2G_{1L}} = 4.2 \qquad (5-31)$$

である。

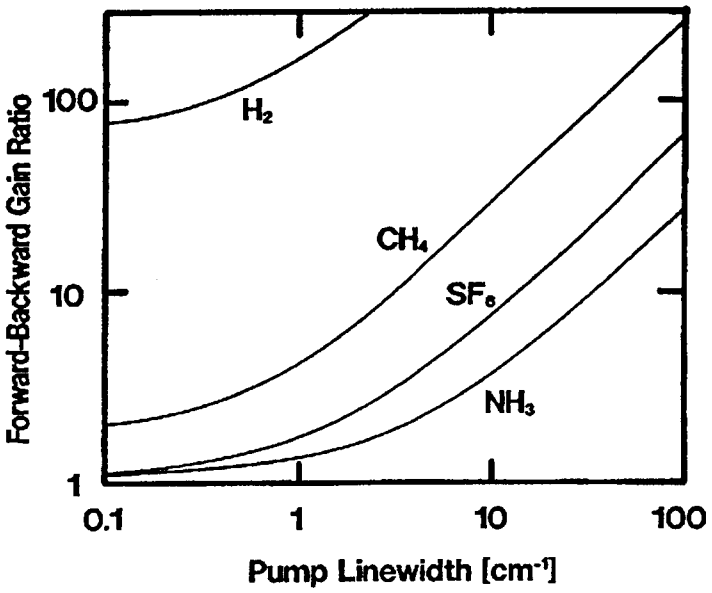
以上の考察をまとめると、T_{2b}の範囲は

$$\frac{T_2}{4} < T_{2b} \leqq T_2 \quad \text{i.e.} \quad R = \frac{T_2}{T_{2b}} < 4 \qquad (5-32)$$

に限定される。

本パルス圧縮法にとって理想的なラマン媒質は、前方－後方利得比が小さく、かつ高い利得の得られる媒質である。言い換えると、$\Delta\nu_d$が小さく、微分散乱断面

積ｄσ／ｄΩが大きい分子が良い。Ｔａｂｌｅ　５－２に代表的なラマン媒質のｄσ／ｄΩ、Δνｒ、およびＴ２を示す。また、圧力５ａｔｍ、室温における励起線幅Δνｐに対する、前方－後方利得比Ｔ２／Ｔ２ｂの計算値をＦｉｇ．５－９に示す。



Ｆｉｇ．５－９　ラマン媒質の前方後方利得比。

水素[12)13)14)15)]は微分散乱断面積は小さいが、共鳴線幅が狭く高い前方利得が得られる。このため、紫外レーザー用ラマン媒質としてしばしば用いられる。しかし、分子が軽量であるためにドップラー広がりが大きく、Δνｐ＝０を仮定しても（５－３２）式の条件を満たすことは難しい。

本実験（５．３節）では、微分散乱断面積が大きく[16)]、３０ｐｓ前後のＴ２を持つメタン[17)]を使用した。メタンのΔνｒは平ら[18)]によって測定されており、そのガス圧力ｐ（ａｔｍ）に対して

$$\Delta\nu_r(p) = 0.32 + 0.012p \ [cm^{-1}] \qquad (5-33)$$

の関係にあり、T2に換算すると

$$T_2(p) = \frac{1}{\pi\Delta\nu_r(p)} = \frac{33}{1+0.0375p} \ [ps] \qquad (5-34)$$

である。メタンの場合（５－３２）式の条件を満たす為には、励起線幅は１cm^{-1}以下でなくてはならない。

さらに短い時間領域では、１０ｐｓ以下のＴ２を持つ六フッ化硫黄や酸素分子、窒素分子がラマン媒質の候補として考えられる。しかし、これらの媒質は微分散乱断面積が小さく利得が低い。さらに、利得はT_{2b}に比例して低下するので、短パルスストークス光が十分な利得を得る為には、非常に高い励起光強度が要求される。このため、５．１－１節で述べたラマン媒質の光学的破壊が懸念される。NH_3は微分散乱断面積が大きく、また、前方－後方利得比が小さいために良い条件を備えているが、ＫｒＦレーザー波長における吸収が大きく適当でない。

Ｔａｂｌｅ ５－２　ラマン媒質の微分散乱断面積と横緩和時間

	$d\sigma/d\Omega$ ($\times 10^{-29}$ cm^2/sr)	$\Delta\nu_r$ (cm^{-1})	T2 (ps)
CH_4	15.3	0.38	27.9
NH_3	9.2	≃4.0	2.7
H_2	4.8	0.01	1008.0
SF_6	6.0	1.6	6.6
O_2	3.88	1.8	5.9
N_2	1.52	≃1.5	7.1

５．１－５　まとめ

後方ラマンパルス圧縮法の問題点を考察し、高圧縮率化について検討した。１次ストークス光利得と２次ストークス光利得の性質の違いに着目し、２次ストークス光発生を過渡領域にして抑制する新しい方法を提案した。

[1] 後方２次ストークス光は前方散乱により発生する。前方散乱は gain narrowing によってラマン媒質の横緩和時間Ｔ２より短い時間領域では完全に過渡状態である。このため、１次ストークス光パルス幅をＴ２以下に保つことにより、２次ストークス光の抑制が可能である。同時に、２次ストークス光利得は１次ストークス光の波形に依存せず、１次ストークス光フルーエンスの平方根に比例する。

[2] 一方、後方散乱の利得帯域は励起光の線幅、ドップラー幅の影響により前方散乱に比べて広い。さらに、利得飽和により広帯域化される。このため、前方散乱が過渡状態となるＴ２以下の時間領域でも、後方１次ストークス光は定常利得で増幅出来る。

[3] 過渡法を用いると後方１次ストークス利得G1が３の場合に、定常法の６倍以上に相当する５２倍の圧縮率が得られる。さらに、２次ストークス光に対して損失を与えることにより、そのしきい利得の２乗に比例して圧縮率を増加できる。

[4] 過渡法の適用範囲は後方１次ストークス光パルス幅 τ_{1s} が $T_{2b} \leqq \tau_{1s} \leqq T_2$ の領域である。ここで、後方利得の実効横緩和時間 T_{2b} の最小値は前方１次ストークス光の発生によりＴ２／４に制限される。

[5] ３０ｐｓのストークスパルス幅に対してメタンが有効なラマン媒質である。メタンを用いる場合、前方１次ストークス光抑制のために励起光の線幅を１ｃｍ$^{-1}$以下にする必要がある。

5．2　シミュレーションコードを用いた解析

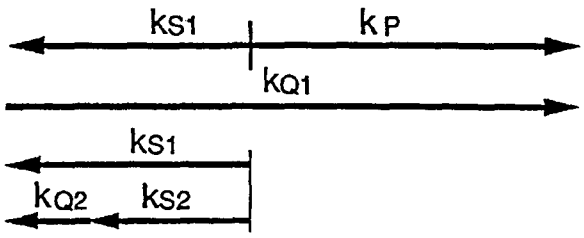
本節では光と分子振動の Coupled−Wave Equations を数値的に解くことによって、分子振動や光の電界の過渡的な振る舞いを求め、解析解の有効性を示す。さらに、ストークスパルス幅、入力ストークス光強度、ガス圧力変化に対する圧縮器の動作を考察する。この過程を通じて、過渡法の最適動作条件とその適用限界を明かにする。

5．2−1　計算機モデル

[1] Coupled-Wave Equations

誘導ラマン散乱は励起光とストークス光の差周波電界と、分子の分極振動の相互作用によって記述することができる。ここでは、励起光やストークス光を平面波として扱う。レーザー光やストークス光の縦モードが一つの場合には、分子振動と電界の関係は単純化され、それらはすでに Coupled−Wave Equations として導出されている。[19]

後方ラマン圧縮器中には励起光、後方１次ストークス光、そして後方２次ストークス光の３つの光が同時に同じ空間に存在する。通常、３つ以上に光が混在する場合、４光波混合等の高次の相互作用を考慮する必要がある。しかし、後方ラマン圧縮器内部では、３つ以上の光が位相整合する条件は無く、新たな光は散乱されない。後方ラマン圧縮器中の光、分子振動の位相整合条件をＦｉｇ．５−１０に示す。励起光と後方１次ストークス光が作り出す分子振動の空間的分布Q_1は、後方２次ストークス光と結合して新たな光を発生しない。一方、後方１次、２次ストークス光を結合するQ_2と励起光は相互作用しない。故に、第



Ｆｉｇ．５−１０　後方ラマン圧縮器中の位相整合条件。

４の光は散乱されず、２つの散乱過程は完全に独立して記述することができる。

ここで、数値計算上、以下の仮定を設けた。

a. 媒質の分散は無視し、光の速度を全て等しくｃとする。

b. フーリエ限界パルスである。

（位相は連続で、キャリア周波数は単一である。）

c. １次元に伝播する平面波を扱う。

さらに、光や分子振動の振幅の時間変化が、その周波数に比べて十分ゆっくりであると近似した場合（ slowly−varying amplitude approximation ）、上記３つの光と２つの分子振動を記述する方程式は

$$\frac{\partial E_p}{\partial z} + \frac{1}{v_p}\frac{\partial E_p}{\partial t} = i C_1 \frac{v_p}{v_{1s}} \frac{\omega_p}{\omega_{1s}} Q_1 E_{1s} \qquad (5-35)$$

$$\frac{\partial E_{1s}}{\partial z} + \frac{1}{v_{1s}}\frac{\partial E_{1s}}{\partial t} = i C_1 Q_1^* E_p + i C_1' \frac{v_{1s}}{v_{2s}} \frac{\omega_{2s}}{\omega_{2s}} Q_2 E_{2s} \qquad (5-36)$$

$$\frac{\partial E_{2s}}{\partial z} + \frac{1}{v_{2s}}\frac{\partial E_{2s}}{\partial t} = i C_1' Q_2^* E_{1s} \qquad (5-37)$$

$$\frac{\partial Q_1}{\partial t} + \frac{1}{T_{2b}} Q_1 = i C_2 E_p E_{1s}^* \qquad (5-38)$$

$$\frac{\partial Q_2}{\partial t} + \frac{1}{T_2} Q_2 = i C_2' E_{1s} E_{2s}^* \qquad (5-39)$$

である。ここで、

E_p ：励起光複素電界　　ω_p ：励起光角周波数

E_{1s} ：１次ストークス光複素電界　　ω_{1s} ：１次ストークス角周波数

E_{2s} ：２次ストークス光複素電界　　ω_{2s} ：２次ストークス角周波数

T_2 ：横緩和時間

T_{2b} ：後方散乱の実効的な横緩和時間

v　：光の群速度（光速：c）

である。C_1, C_2は媒質で決まる結合定数であって、前方散乱の場合、ε_0を真空中の誘電率として

$$C_1C_2 = \frac{\varepsilon_0}{4T_2}\gamma_f \qquad (5-40)$$

である。後方散乱ではγ_fをγ_bと置き換える。

数値解を求めるために、上記連立偏微分方程式に対して、$Q' = -iC_1Q$の変数変換を行って結合定数まとめ、時間を長さの単位に統一して簡単化する。（tをtcとおいて再定義しする。）さらに、$z' = z - t$、$t' = t$と変数変換し、空間座標z'を固定して偏微分を常微分とする。これらの変数変換によって以下に示す常微分方程式を得る。

２つの光とその間のQ'は

$$\frac{\partial E_p}{\partial t'} = -\frac{\omega_p}{\omega_s} Q' E_s \qquad (5-41)$$

$$\frac{\partial E_s}{\partial t'} = Q' E_p \qquad (5-42)$$

$$\frac{\partial Q'}{\partial t'} = -\frac{1}{cT_2} Q' + \frac{C_1C_2}{c} E_pE_s^* \qquad (5-43)$$

と表せる。これを数値積分して解を求めた。

今、解くべき常微分方程式を

$$\frac{dy(t)}{dt} = x(t) \qquad (5-44)$$

とする。数値積分する刻み幅をhとするとy（t）の変化は

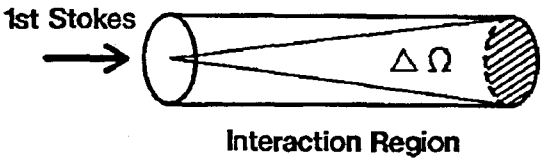
$$y(t+h) = y(t) + \frac{h}{24}\left\{55x(t) - 59x(t-h) + 37x(t-2h) - 9x(t-3h)\right\} \qquad (5-45)$$

として求められる。ここで、誤差はhに対して$O(h^5)$である。

[2] 自然散乱光の導入

後方２次ストークス光は自然散乱光を種光として発生する。自然散乱光発生の概念図をＦｉｇ．５－１１に示す。

今、I_{1s}の強度を持った１次ストークス光により励起される微小体積ｄＶから立体角ΔΩの空間に散乱される自然散乱光（２次ストークス光）を考えると、そのパワーｄW_{sp}は次式で与えられる。[20]



$$\left(\frac{dI_{2s}}{dz}\right)_{sp} = I_{1s}N\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\Delta\Omega$$

Ｆｉｇ．５－１１　自然散乱により発生する２次ストークス光の強度.

$$dW_{sp} = I_{1s}N\frac{d\sigma}{d\Omega}\,dV\Delta\Omega \qquad (5-46)$$

ここで、Ｎは散乱体の密度、ｄσ／ｄΩは微分散乱断面積であって、利得係数γｆを使って記述すると

$$N\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = \frac{hc}{2\lambda_{2s}^{3}}\frac{\gamma f}{T_2} \qquad (5-47)$$

である。ここで、λ_{2s}は自然散乱光（２次ストークス光）の波長である。Ｆｉｇ．５－１１において１次ストークスビームの断面積をＳとすれば、ｄＶ＝Ｓｄｚ、$dI_{2s} = dW_{2s}/S$であるから自然散乱による２次ストークス光強度は単位長あたり

$$\left(\frac{dI_{2s}}{dz}\right)_{sp} = I_{1s}N\frac{d\sigma}{d\Omega}\Delta\Omega \qquad (5-48)$$

である。

シミュレーションコード中では１次ストークス光の伝搬の刻み毎に（５－４８）式を用いて自然散乱光を加えてゆく方法を採用した。自然放出光強度を入力換算等価雑音強度として与える方法[21]に比べ、伝播途中の１次ストークス光強度変化に対応した自然散乱光強度を忠実に与えることができる。

５．２－２　解析解の検証

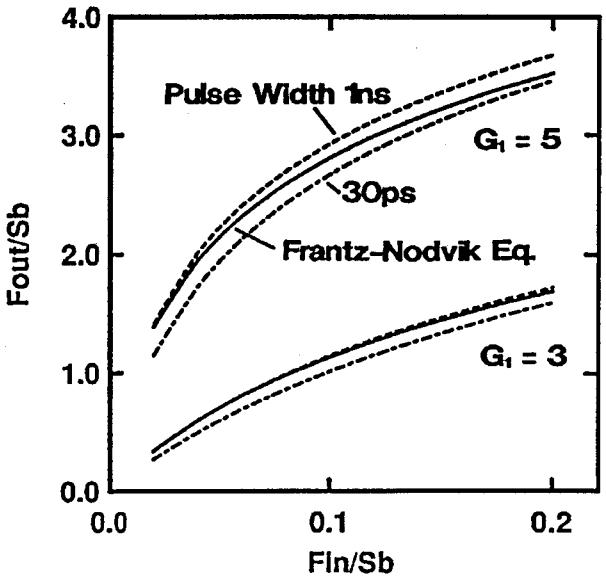
これまで用いてきたFrantz–Nodvikのモデルは定常状態を仮定している。一方、過渡誘導ラマン散乱利得の近似式は完全な過渡領域でかつ小信号動作を仮定している。本パルス圧縮法は、過渡状態と定常状態の境界領域を用いているので、これらの解析解の有効性を確認する必要がある。ここでは、５．１節で用いた解析解の有効性をシミュレーションコードにより検証する。

[1] １次ストークス光の増幅特性

初めに、後方１次ストークス光の利得帯域を求めた。入力パルス幅をパラメータとして利得、およびその飽和特性を計算した。計算条件はメタン１０ａｔｍである。この時のＴ２およびT_{2b}はそれぞれ２４ｐｓ、１５ｐｓである。結果の考察を容易にするために２次ストークス光利得を零として計算した。

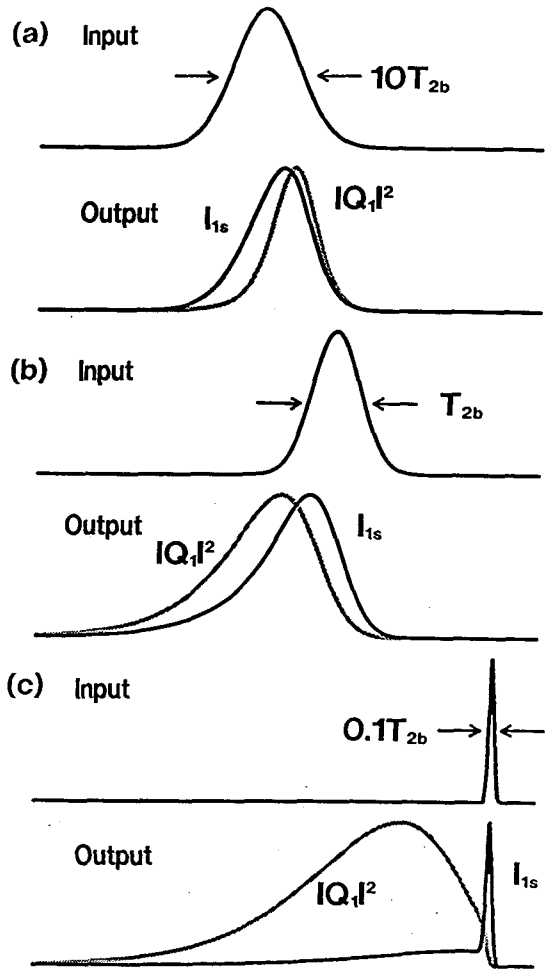
後方ラマン増幅器の入出力特性をＦｉｇ．５－１２に示す。入出力フルーエンスＦ in、Ｆ out は飽和フルーエンスＳ b で規格化してある。点線は入力パルス幅１ｎｓの場合、一点鎖線は３０ｐｓの場合を示している。また、実線は Frantz−Nodvik のモデルを用いた定常解析解である。図中Ｇ１は１次ストークス光の後方利得を示す。パルス幅３０ｐｓの場合の利得は分子振動の時間遅れによって、定常増幅の１ｎｓに比べわずかに低下する。また、Frantz−Nodvik のモデルはその中間値を採る。しかし、これらの間の違いは６％以内に納まっており、パルス幅３０ｐｓでも実効的には定常増幅とみなして差し支え無い。

この結果より、５．１節で用いた Frantz−Nodvik のモデルは、３０ｐｓにおいても良い近似を与えることが示された。



Ｆｉｇ．５－１２　後方１次ストークス光利得のパルス幅依存性。

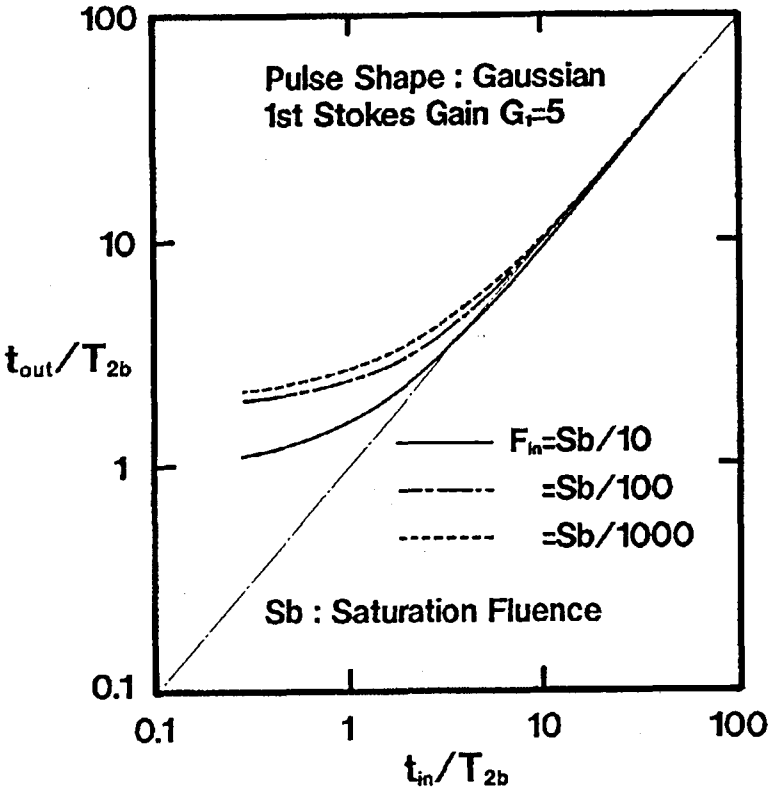
入力パルス幅に対する出力波形の変化をＦｉｇ．５－１３に示す。入力フルーエンスは０．１Ｓ b に固定した。入力パルス幅は（ａ）１０Ｔ 2b、（ｂ）Ｔ 2b、（c）０．１Ｔ 2b である。網線は増幅器出力付近の分子振動のエネルギーＱ１^{2}を示している。各物理量は各々その最大値で規格化してある。図中パルスは左から右に伝播している。１０Ｔ 2b では飽和増幅によって分子振動は出力パルスに先行し、出力パルスは立ち上がり時間が短くなっている。一方、０．１Ｔ 2b では、分子振動は入射パルスに追従できず、散乱光は著しく遅れる。ストークス光のピーク光強度は増加しない。パルス幅がＴ 2b の場合には飽和増幅によるパルスの圧縮と、分子振動の時間遅れによるパルスの広がりが釣りあって安定に伝播することが分かる。



Ｆｉｇ．５－１３　分子振動の過渡応答。
入力パルス幅は（ａ）１０Ｔ$_{2b}$、（ｂ）Ｔ$_{2b}$、
（ｃ）０．１Ｔ$_{2b}$。時間軸は右から左である。

さらに細かく入力パルス幅を変化させて定量評価を行った。結果をＦｉｇ．５－１４に示す。図の横軸は、入力パルス幅ｔ$_{in}$、縦軸は出力パルス幅ｔ$_{out}$で、それぞれＴ$_{2b}$で規格化してある。利得をＧ１＝５に固定し、飽和光強度に対する入力フルーエンスＦ$_{in}$をパラメータとして計算した。Ｆ$_{in}$が

Ｓb／１０００では増幅器は小信号動作しているので、gain narrowing の影響が大きく、ｔｐが３Ｔ2bより短い領域では、パルス広がりが顕著である。入力フルーエンスをＦin＝Ｓb／１０まで増加させると利得飽和によるパルス圧縮効果が生じ、入力パルス幅が２Ｔ2bまではパルス広がりを起こさない。増幅可能な最小パルス幅をパルス広がり５０％の点で定義した場合Ｔ2bまでの増幅が可能である。この結果は、解析解による見積りと良く一致する。



Ｆｉｇ．５－１４　後方ラマン増幅器中におけるパルス広がり。
後方１次ストークス利得は５、パルス波形はＧａｕｓｓ型である。
パルス広がりは入力フルーエンスＦinにより異なる。

[2] 2次ストークス光の発生しきい値

次に、2次ストークス光利得が過渡状態になる時間領域を調べる為に、1次ストークス光パルス幅に対する2次ストークス光発生しきい利得を計算した。発生しきい値は、自然散乱から成長した2次ストークス光が1次ストークス光強度の1%に達する点で定義した。解析解との比較を容易にする為に、後方利得を零として増幅器中の1次ストークス光強度を一定に保った。

Fig. 5−15は、2次ストークス光が発生に要した利得の1次ストークス光パルス幅依存性である。横軸はT2とストークスパルス幅tsとの比T2／tsである。縦軸の利得は定常利得に換算して表現してある。計算結果は（5−17）で用いたB.Bobbsらの近似解（破線）と関数形および絶対値ともに良く一致している。

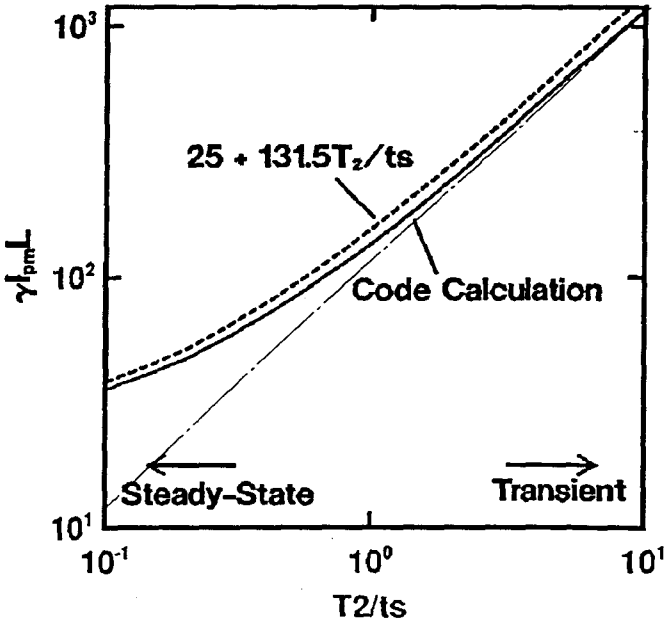


Fig. 5−15　2次ストークス光しきい利得のパルス幅依存性。
破線はB.Bobbsらの近似解を示す。

T2／tsが1以上の領域では2次ストークス光しきい値は1次ストークス光のフルーエンスより決定されている。このことから、パルス幅がT2より短い場合には完全に過渡領域であることが明かである。定常散乱によるしきい利得25と、上記傾き1の直線の交点はシミュレーションでは4T2、解析解では6T2でありほぼ一致する。解析的に予測した gain narrowing の効果が数値解析によっても示された。

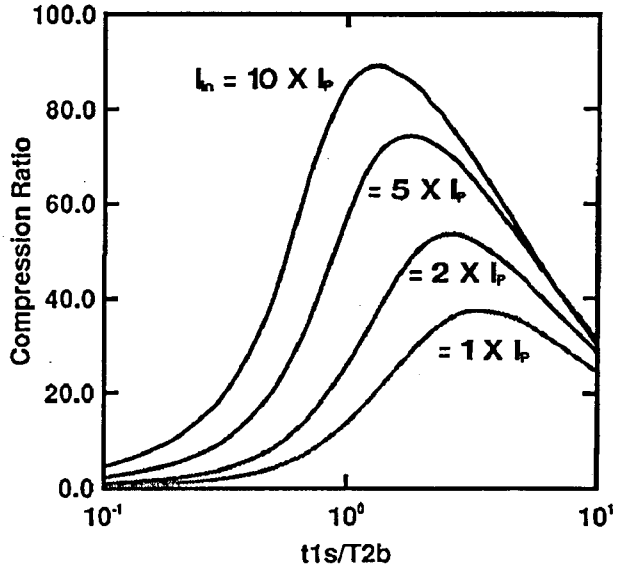
以上の計算により、１次ストークス光のパルス幅τ_{1s}が$T_{2b} \leqq \tau_1 \leqq T_2$の範囲では、１次ストークス光は定常利得で増幅され、同時に、２次ストークス光は過渡状態となって抑制されることが明かになった。この結果は、前記解析解を用いた見積と良く一致することから、解析解の有効性が示された。

５．２－３　圧縮率と変換効率

本小節では、入力ストークス光パルス幅やその強度、メタンガス圧力変化に対して圧縮率を計算し、圧縮器の最適動作条件を考察する。

[1] 入力パルス幅と圧縮率

入力パルス幅を変化させて圧縮率を計算した。計算条件は５．２－２と同様で１次ストークス利得G_1＝５、T_2およびT_{2b}はそれぞれ２５ｐｓ、１５ｐｓである。入力光強度をパラメータにした、ストークスパルス幅と圧縮率の関係をＦｉｇ．５－１６に示す。横軸はT_{2b}で規格化した入力ストークスパルス幅、縦軸は出力ストークス光強度のピーク値を励起光強度で規格化した圧縮率である。入力光強度の変化に伴い最適なパルス幅も変化している。最適値よりも入力パルス幅が長い領域では、２次ストークス光発生が定常値に近づいてしきい利得が低下する。一方、



Ｆｉｇ．５－１６　ストークスパルス幅と圧縮率。

パルスが短くなると利得帯域制限によるパルス広がりを生じて、光強度が低下する。

入力光強度を増すにつれて、入力パルス幅が短い時に高い圧縮率が得られるようになる。これは、利得飽和により gain narrowing 効果が小さくなることに加え、第４章で述べた利得の動的飽和によるパルスの立ち上がり時間の短縮が起こり、利得帯域制限による立ち上がり時間の遅れを補償する為である。

増幅器を十分飽和するに十分な入力光強度がある場合にはτ_{1s}がT_{2b}から$2T_{2b}$の範囲で最も高い圧縮率が得られることが明らかになった。この結果は解析解を用いた見積と良く一致する。

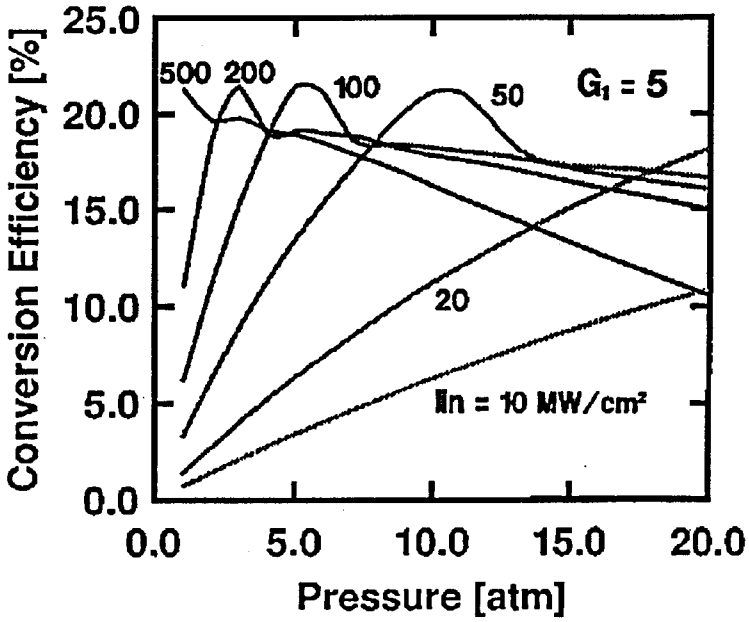
[2] 入力光強度、圧力依存性

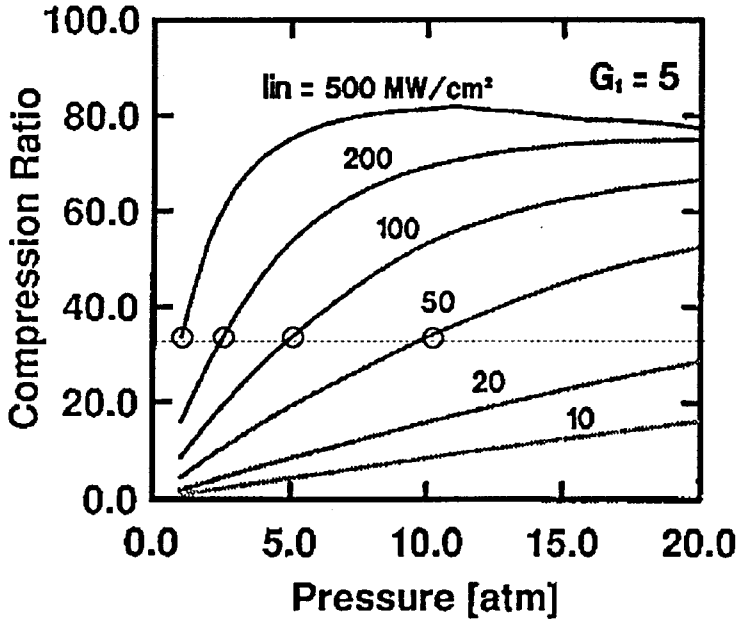
入力光強度およびメタンガス圧力をパラメータとして、変換効率および圧縮率の変化を計算した。変換効率をＦｉｇ．５－１７（上）に示す。横軸は圧力、縦軸は変換効率、パラメータは入力光強度I_{in}である。変換効率の最大値は２次ストークス光発生によって制限されている。例えば、I_{in}＝１００MW／ｃm^2の場合は、２次ストークス光の発生しきい値は圧力５ａｔｍである。入力光強度を５０MW／ｃm^2から５００MW／ｃm^2まで１桁に渡って変化させても圧力を最適化すれば、変換効率の最大値は全く変化しない。これは解析的［（５－２８）式］によって与えられる変換効率ηが

$$\eta = \frac{\tau_{1s}}{\tau_p}\frac{G_2^2}{4G_1} \qquad (5-49)$$

であり、入力光強度に無関係であることと一致する。

光強度の増倍率をＦｉｇ．５－１７（下）に示す。図中解析解による２次ストークス光の発生しきい値（圧縮限界）を点線で示し、シミュレーションコードによる２次ストークス光の発生しきい値を○で示す。光強度増倍率２次ストークス光しきい値を超えても増加を続け、最大値では解析解の２．５倍に相当する８０倍が得られた。

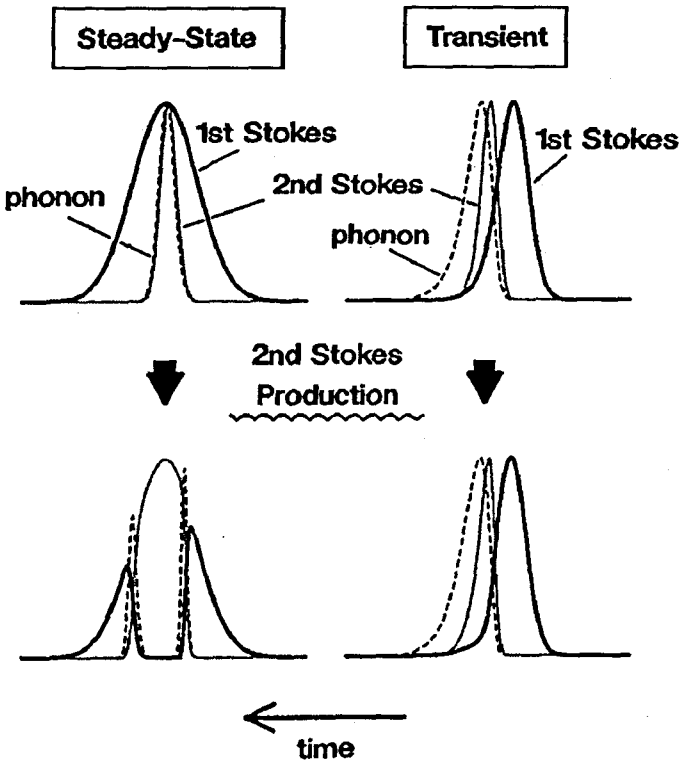




Ｆｉｇ．５－１７　変換効率（上）、圧縮率（下）のメタン圧力依存性。パラメータは入力光強度である。２次ストークス光発生しきい値を○で示す。点線は解析解による圧縮限界である。

解析解を越える高い圧縮率が得られる理由は、２次ストークス光の時間遅れにある。定常領域と過渡領域における１次ストークス光と２次ストークス光の時間関係をＦｉｇ．５－１８に示す。定常散乱では、２次ストークス光利得は１次ストークス光のピークで最も高く、２次ストークス光の発生は１次ストークス光のピーク光強度を低下させる。一方、過渡領域では、２次ストークス光は１次ストークス光に比べ遅れるためにピーク光強度への影響は小さく、むしろパルス幅を減少させる。

これらの考察より、過渡法では、２次ストークス光の発生は直接ピーク光強度を制限せず、解析的見積もりを超える圧縮率が得られることが明らかになった。



Ｆｉｇ．５－１８　２次ストークス光の発生による
１次ストークス光の減衰。
（定常法と過渡法の比較）

５．２－４　まとめ

誘導ラマン散乱の Coupled−Wave Equations を用いて、過渡法の適用限界について考察した。

[1] 増幅可能な最短の後方１次ストークスパルス幅は後方散乱の実効的横緩和時間 T_{2b} に一致する。利得、およびその飽和特性は Frantz−Nodvik のモデルと良い一致を示す。

[2] １次ストークスパルス幅がラマン媒質の横緩和時間 T_2 以下では、２次ストークス光発生は完全に過渡状態である。その発生しきい利得は過渡ラマン利得の解析解（５－１２）式と一致する。

[3] 本パルス圧縮法の有効範囲は $T_{2b} \leqq \tau_{1s} \leqq T_2$ であることを示した。

[4] 最も高い圧縮率は τ_{1s} が T_{2b} ～ $2T_{2b}$ の範囲で得られることを明らかにした。

[5] 変換効率の最大値は入力光強度やガス圧力に依存せず、解析解と良く一致する。一方、２次ストークス光は１次ストークス光に対し時間的に遅れ、１次ストークス光強度は２次ストークス光発生しきい値を超えても増加を続けることを明らかにした。解析的見積の２．５倍に相当する圧縮率が得られることが分かった。

５．３　ＫｒＦレーザーの後方過渡ラマン圧縮実験

本節では過渡ラマンパルス圧縮法の原理実証実験について述べる。パルス幅２０ｎｓのＫｒＦレーザー光を３０ｐｓの１次ストークスパルスに変換し、２次ストークス光しきい値利得と圧縮率の関係を実験的に明かにする。

初めに、本圧縮法を実現するために必要な実験条件を示し、装置の構成について説明する。次いで、励起レーザーの線幅と後方ラマン散乱の利得帯域変化を実験的に考察する。変換効率と圧縮率を測定し、解析解との比較を示す。最後に、解析解により予測される２次ストークス光発生しきい利得に対する圧縮率のスケーリング則を実験的に示し、圧縮限界を考察する。

５．３－１　ＫｒＦレーザー励起ラマン増幅システム

本パルス圧縮法を適用するためには、ラマン増幅器の利得帯域を厳密に制御する必要がある。同時に、１次ストークス光はフーリエ限界パルスあることが望まれる。これらの理由から、励起光のスペクトル制御、種ストークス光の位相制御が最も重要な課題である。

圧縮実験に必要な条件を具体的にまとめると、

①$T_{2b} = T_2/4 \sim T_2$の範囲のT_{2b}を実現できる線幅を持った励起光を発生すること、

②限られた増幅帯域の中で最も短いストークスパルスを得るために、種となるストークス光はフーリエ限界であること、

そのパルス幅τ_{1s}は$T_{2b} \leqq \tau_{1s} \leqq T_2$の範囲にあること、

（最適条件は$\tau_{1s} = T_{2b}$である。）

である。以下、これらの条件を満たす為に行った

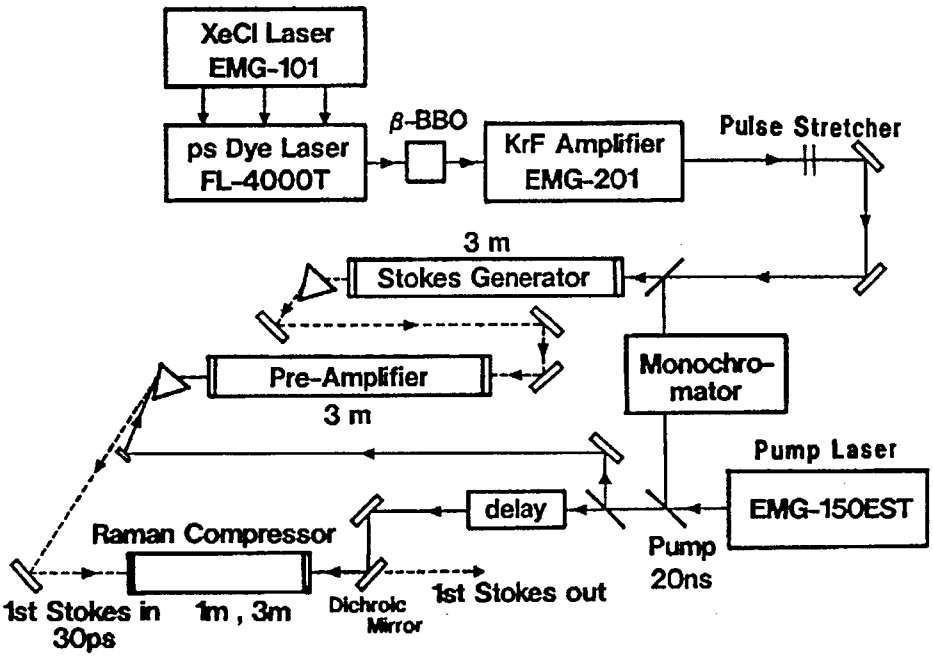
①励起用ＫｒＦレーザーのスペクトル制御、

②短パルスストークス光のパルス幅制御、

について述べる。

ＫｒＦレーザー励起ラマンパルス圧縮システムをＦｉｇ．５－１９に示す。励起

用ＫｒＦレーザーには注入同期型放電型レーザー（ EMG−150EST ：図中右下）を用いた。短パルス光の発生には第４章で述べたＸｅＣｌ励起・短共振器色素レーザー（ Lambda Physik FL−4000T ）を用いた。色素レーザー出力をＢＢＯ結晶を用いて第２高調波に変換した後、放電型ＫｒＦレーザー増幅器（ Lambda Physik EMG−201MSC ）を用いて増幅した。この配置で得られた出力パルス幅は２ｐｓである。この出力光をエタロン（ＦＳＲ＝１．１ｃｍ^2、Ｆ＝８．８）に通し、パルス幅を１５ｐｓにまで伸長した。同時に、ラマンプリアンプの利得帯域を可変して主圧縮器へのパルス幅を調節した。詳細は後方ラマン増幅器の帯域測定と共に後で述べる。



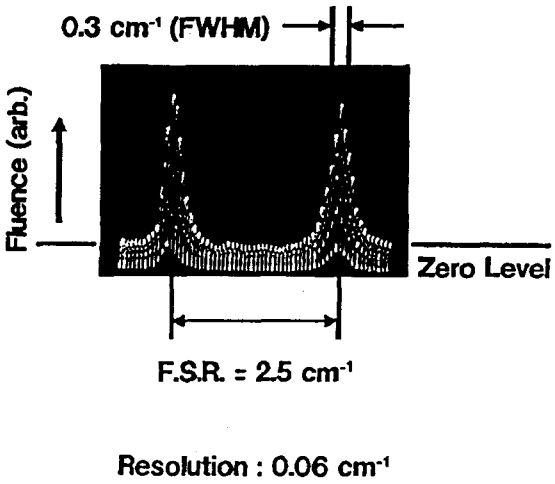
Ｆｉｇ．５−１９　ＫｒＦレーザー励起ラマンパルス圧縮システム

[1]　励起レーザーのスペクトル制御

５．１節で検討したように、前方１次ストークス光のしきい値以下で圧縮器を動作させる為には、励起光の線幅Δνｐは１ｃｍ$^{-1}$以下でなくてはならない。ＫｒＦレーザー発振器をフリーランニングさせた場合、スペクトル幅はΔνｐ＝４０

ｃｍ$^{-1}$程度であるので、その狭帯域化は必須である。注入同期法を用いて励起レーザーの狭帯域化を行った。

用いたＫｒＦレーザー（Lambda Physik EMG−150EST）は、主、従２つの発振器を備えている。主発振器により発生させた狭帯域光を従発振器の不安定共振器に注入し、狭帯域、高エネルギーのＫｒＦレーザー光を発生させた。



Ｆｉｇ．５−２０　励起光のスペクトル幅。

主発振器の全反射ミラーの前には、３つの拡大プリズム、２つの分散プリズム、およびソリッドエタロン（厚さ３ｍｍ、両面Ｒ＝７０％コート、ＦＳＲ＝１．１ｃｍ$^{-1}$、Ｆ＝８．８）からなる波長選択素子を挿入した。同時に、出力鏡の反射率を１０％から９０％に増加させ、これら波長選択素子を通過するレーザー光の透過回数を増やした。横モードの制御は、共振器の両端に設けたφ１ｍｍのアパーチャーにより行った。主発振器からの種光は偏光子により直線偏光させ、従発振器に注入した。ＦＳＲ＝２．５ｃｍ$^{-1}$、Ｆ＝４３のエアーギャップエタロンの透過干渉縞をMOSリニアーイメージセンサー（HAMAMATU　S3903−512Q、２５μｍピッチ）によって観測し、レーザー線幅を測定した。測定系の分解能は０．０６ｃｍ$^{-1}$である。

得られた線幅はＦｉｇ．５−２０に示すように$\Delta\nu_p$＝０．３ｃｍ$^{-1}$であった。T_{2b}に換算すると１４ｐｓに相当し、上記必要条件を満たす値である。

[2]　種ストークス光の発生とスペクトル制御

メタンを封入したラマンセルに短パルスＫｒＦレーザー光注入し、前方散乱により種ストークス光を発生させた。

ストークス光発生には、一般に励起光をラマン媒質中に集光する方法が用いられる。しかし、この方法では励起光と発生した１次ストークス光が幅広い角度で交差するために、ラマン４光波混合の位相整合条件を満たして２次ストークス光が発生する可能性がある。この２次ストークス光発生はしきい値を持たないので問題である。本実験では、長さ３ｍのラマンセル中をビーム径４ｍｍの平行ＫｒＦレーザービームを伝播させて４光波混合を防いだ。得られた１次ストークスビームの発散角は２ｍｒａｄであった。

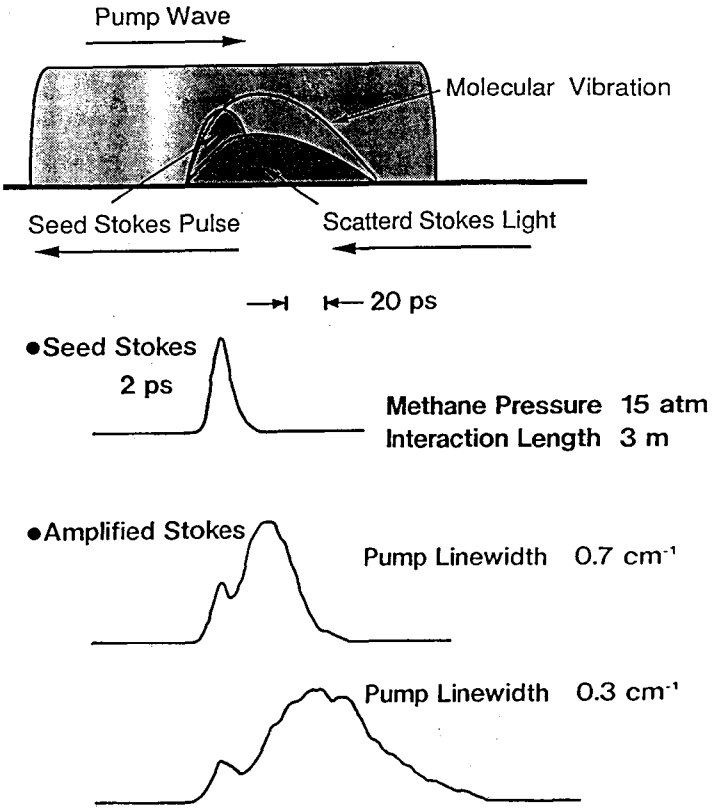
励起用レーザーとストークス光発生用の短パルスレーザーは同一の回折格子分光器（Nikon　G500 Ⅲ）およびリニアーイメージセンサーを用いてモニターし、常に周波数を一致させた。厳密に議論すれば、ストークスシフトν_rの絶対値がメタンガス圧に対して０．０２cm^{-1}／ａｔｍ[17]の割合で変化（pressure　shift）する。前方ラマン増幅器を用いる場合には利得帯域が狭いので、ストークス発生器とラマン増幅器の圧力を厳密に一致させる必要がある。しかし、後方ラマン増幅器の場合には、利得帯域幅が$\Delta\nu_p+\Delta\nu_d+\Delta\nu_r=1/\pi T_{2b}=0.8\ cm^{-1}$とpressure shiftに比べ十分広く、１０ａｔｍ程度の圧力差は問題にならない。

５．３－２　パルス圧縮実験

[1]　後方ラマン利得帯域幅の励起光線幅依存性

初めに、利得線幅と増幅帯域の関係を時間領域で観測した。ストークス発生器で発生させたはパルス幅２ｐｓのストークス光を、１５ａｔｍのメタンで満たしたプリアンプに入力した。ストリークカメラ（HAMAMATU　C979）によって観測したプリアンプの入出力波形をＦｉｇ．５－２１に示す。図中の入力パルスの見かけの幅がストリークカメラの分解能に対応しており、ほぼ１０ｐｓの分解能である。出力パルスの第１ピークは入射させた種光で、過渡状態であるのでほとんど増幅されていない。一方、第２ピークは散乱されたストークス成分である。この様子の概念を図中上部に示した。分子振動の振幅はストークス光強度の時間積分値になるために、そのピークは種ストークス光の最終部分に現れる。しかし、増幅が進むに連れて散乱された光のエネルギーが種ストークス光のそれよりも大きくなるので、分子

振動は実効的に散乱光により励起されるようになる。その結果、Ｆｉｇ．５－２１のように出力光は種光と散乱光の２つパルスに分離する。散乱光は増幅と共に後方にパルス幅を増加する。これを周波数空間で考えれば、増幅につれて gain narrowing が強くなってゆくものとして理解できる。



Ｆｉｇ．５－２１　後方ラマン増幅器（プリアンプ）の過渡応答。

励起線幅$\Delta\nu_p$が０．３ｃｍ$^{-1}$の時、出力パルス幅τ_{1s}は６０ｐｓであった。ここで、励起レーザーのエタロンを取り除いて$\Delta\nu_p$を０．７ｃｍ$^{-1}$に広げるとパルス幅は３０ｐｓに短縮され、増幅帯域が利得線幅によって広がることを確認した。

入力ストークスパルスをδ関数と見なし、増幅後のパルス広がりから増幅器の実効帯域を求めた。$\Delta\nu_p$＝０．３ｃｍ$^{-1}$の時には、増幅器の小信号利得G_1は１１であって、その gain narrowing factor　Ｆは０．２７である。故に、測定されたT_{2b}

は$T_{2b}=\tau_{1s}\cdot F=60\times0.27=16.2$ psである。一方、メタンの$\Delta\nu_r$および$\Delta\nu_d$から計算により求めたT_2、T_{2b}のメタン圧力依存性をFig. 5－22に示す。15atmにおけるT_{2b}の計算値は13psであり、ストリークカメラの時間分解能の範囲で実験値と計算値は一致している。同様に、$\Delta\nu_p=0.7\ cm^{-1}$の時には$G_1=7.3$、gain narrowing factorは0.32であり、T_{2b}は9.6psと測定された。計算値による$T_{2b}=8.8$ psと一致する。

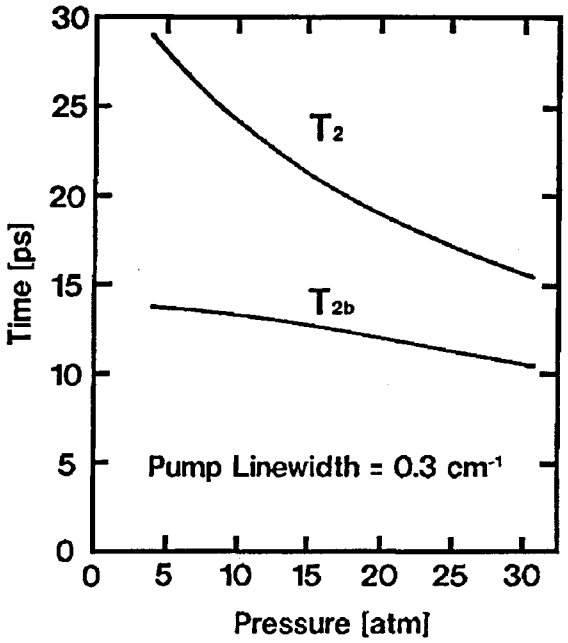


Fig. 5－22　T_2, T_{2b}のメタン圧力依存性。

[2] 圧縮率と変換効率

主圧縮器として長さ1mのラマンセル（励起時間6.7nsに相当）を用い、圧縮率と変換効率を測定した。

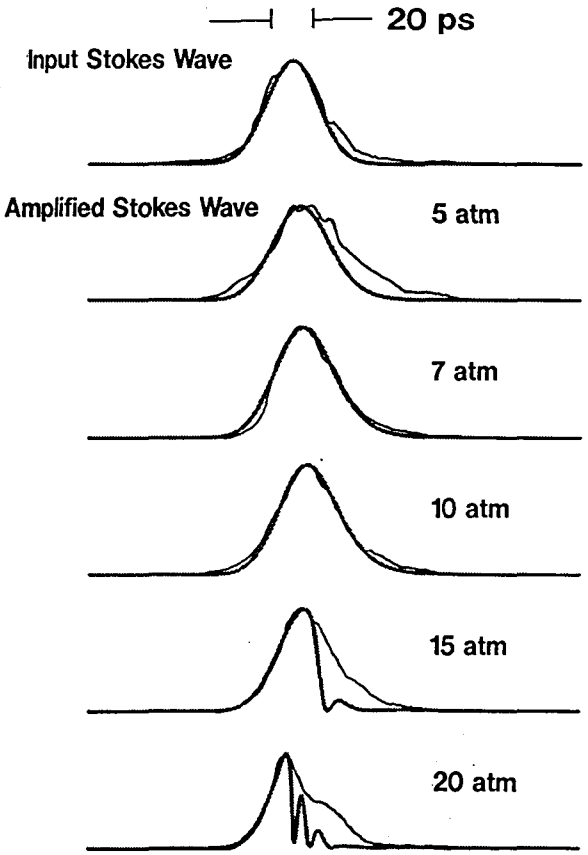
主圧縮器への入力パルスとして必要とされる30psのフーリエ限界パルスを発生させる為に、短パルスKrFレーザー出力をエタロンを用いいて15psまで伸長した。同時に、プリアンプの励起光強度を下げてその利得を$G_1=5$まで減らし、プリアンプの gain narrowing を緩和させた。これらの変更によりパルス幅30ps

フーリエ限界ストークスパルスを得た。実験条件は、励起光強度およびストークス光フルーエンスはそれぞれ３０MW／ｃｍ^2、および２．５ｍＪ／ｃｍ^2、励起線幅Δνｐは０．３ｃｍ$^{-1}$である。

①ストークス光パルス幅の変化

ストリークカメラによって観測した１次ストークス波形の圧力依存性をＦｉｇ．５－２３に実線で示す。図中の網線は、シミュレーションコードによる計算結果である。定常法で観測される動的利得飽和によるパルスの先鋭化は測定範囲全域で認められない。１０ａｔｍまでは実験値と計算値は良く一致している。

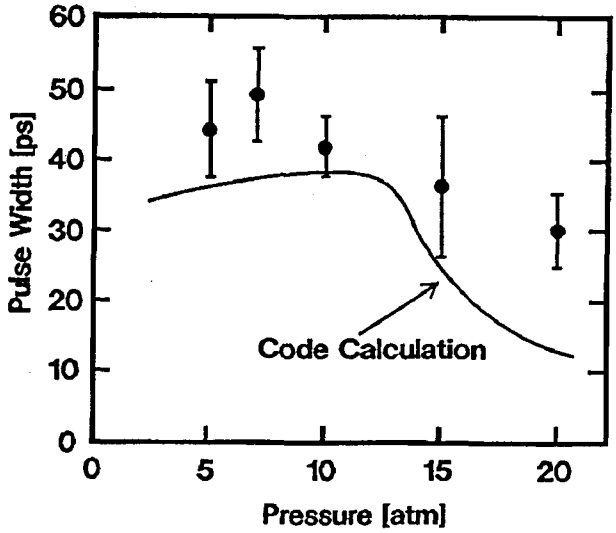
１５ａｔｍ以上では２次ストークス光の発生しパルス幅が減少している。２０ａｔｍの計算結果では、１次ストークス光にリンギングが現れる。これは、２次ストークス光によって１次ストークス光が完全に消失した後も、Ｔ２の間は分子振動が励起されていることによる。この分子振動は１次、２次ストークス光と位相整合しているから、２次ストークス光を再び散乱して１次ストークス光を生成する。但し、ここで生成される１次ストークス光の位相は１次ストークス主パルスと逆相である。この過程を繰り返し、１次ストークス光と２次ストークス光の間でエネルギーの授受が行われ、リンギングが発生する。リンギングの減衰時間はＴ２である。一方、リンギングの周



Ｆｉｇ．５－２３　ストークス波形の圧力依存性
測定値を実線で、計算値を網線で示す

期は光強度に依存する。実験条件において、リンギングの周期はストリークカメラの時間分解能以下であるため観測されない。

圧力に対するパルス幅の変化をＦｉｇ．５－２４にまとめる。図中の実線はシミュレーションによる計算値を示す。計算結果は測定値と測定系の時間分解能の範囲で一致している。１２ａｔｍ以上でのパルス幅の減少は２次ストークス光発生による。



Ｆｉｇ．５－２４　出力パルス幅のメタン圧力依存性。
計算値を実線で示す。

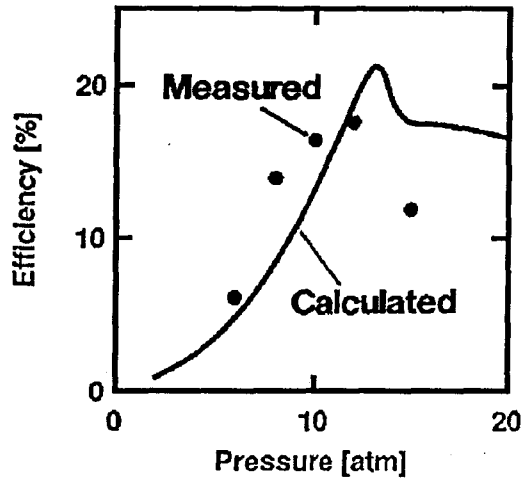
②圧縮率の圧力依存性

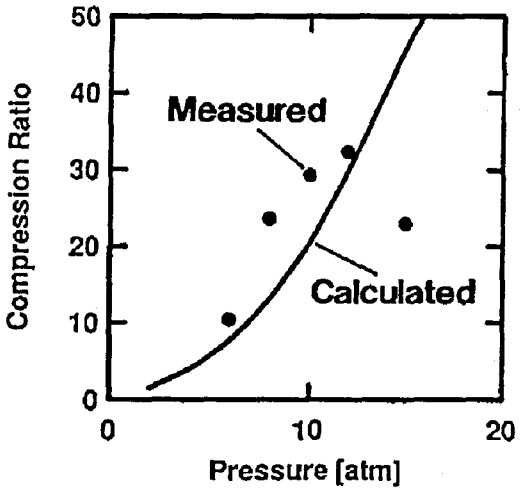
圧縮器のメタンガス圧力に対する出力ストークス光強度、変換効率をＦｉｇ．５－２５に示す。出力光強度はメタン圧力とともに増加し、１２ａｔｍで０．９４GW／ｃm^2が得られた。この光強度は励起光強度の３１倍に相当する。後方ラマンパルス圧縮法で初めて１０倍を超える圧縮率を実現した。この時の変換効率は１８％であった。変換効率の理論値は

$$\eta = \frac{\tau_{1s}}{\tau_p}\frac{G_2^2}{4G_1} = \frac{30}{6700}\frac{25^2}{4\times 3} = 23 \qquad (5-50)$$

である。理論限界の８０％の効率が得られた。

１２ａｔｍ以上では２次ストークス光の発生により１次ストークス光強度は低下した。シミュレーションコードによる計算値を図中実線で示す。変換効率では良く一致しているが、圧縮率では測定値が低い。２次ストークス光発生により１次ストークス光パルス幅が測定系の時間分解能以下となった為と推測される。

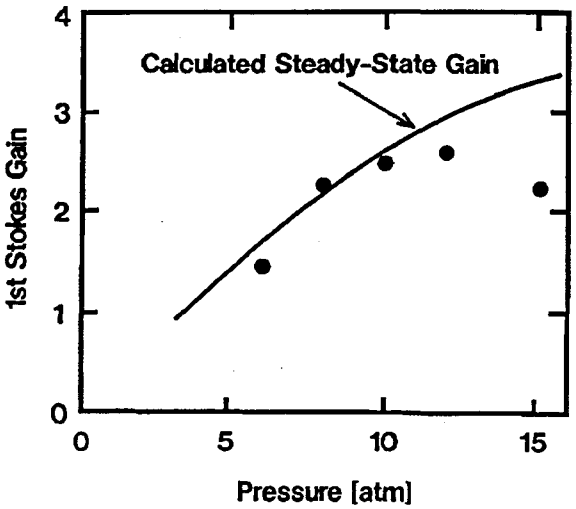




Ｆｉｇ．５－２５　圧縮率と変換効率。
励起光パルス幅は６．７ｎｓ、
ストークスパルス幅は３０ｐｓである。

③１次ストークス利得

１次ストークス利得G_{1L}の圧力依存性をＦｉｇ．５－２６に示す。図中○が測定値を表す。実線は Frantz−Nodvik のモデルを用いた計算値である。測定値は定常散乱の理論値に一致した。この結果から、解析解、シミュレーションコードの有効性が示された。１２ａｔｍ以上における利得低下は２次ストークス光発生による。



Ｆｉｇ．５－２６
後方１次ストークス利得の圧力依存性。Frantz-Nodvikのモデルによる計算値を実線で示す。

④２次ストークス光利得

２次ストークス光の発生にはｅｘｐ（２５）＝７．２×１０^{10} 倍の利得を要し、その直接測定は困難である。そこで、入出力ストークス光強度から Frantz−Nodvik のモデルを用いて圧縮器内部における１次ストークス光強度の光軸上の変化$I_{1s}(z)$を計算し、２次ストークス光利得を求めた。２次ストークス光の定常利得$G_{2s,ss}$を

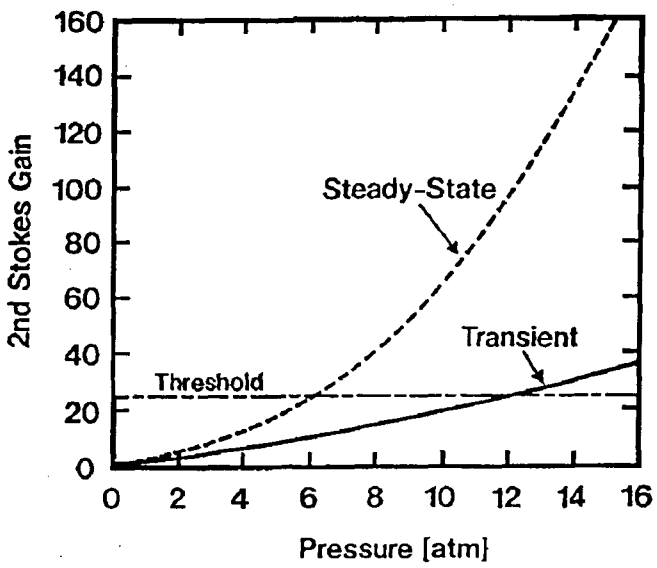
$$G_{2s,ss} = \gamma_f \int_0^L I_{1s}(z)\, dz \qquad (5-51)$$

により求めた。一方、２次ストークス光の過渡利得G_{2T}は$G_{2s,ss}$を用いて

（５－１２）式と同様に

$$G_{2T} \approx 2\sqrt{\frac{2\,G_{2s,ss}\,\tau_{1s}}{T_2}} \qquad (5-52)$$

によって算出した。ここでτ_{1s}は１次ストークス光パルス幅である。



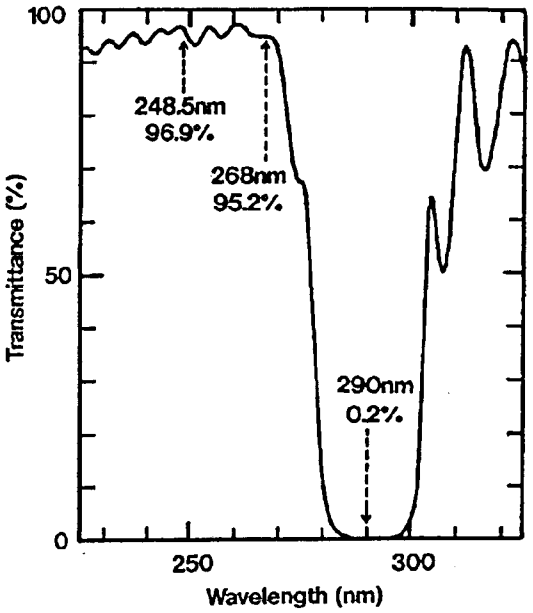
Ｆｉｇ．５－２７　定常および過渡ラマン利得の圧力依存性。（計算値）

Ｆｉｇ．５－２７に計算により求めた定常、過渡利得の圧力依存性を示す。２次ストークス光の発生しきい値は、定常法では６ａｔｍ、過渡法では１２ａｔｍである。実験結果は、過渡法のしきい値と良く一致し、２次ストークス光が過渡的に抑制されていることが明かである。

[3] ２次ストークス光しきい値利得依存性

２次ストークス光しきい値利得に対する圧縮率のスケーリング則を実験的に求めた。２次ストークス光減衰にはダイクロイックミラーを用いた。試作したダイクロイックミラーの波長透過率曲線をＦｉｇ．５－２８に示す。反射光を避ける為に入射角は１０°で設計した。励起光（249nm）、１次（268nm）、２次ストークス光（290nm）の透過率はそれぞれ０．９７、０．９５、０．００２である。

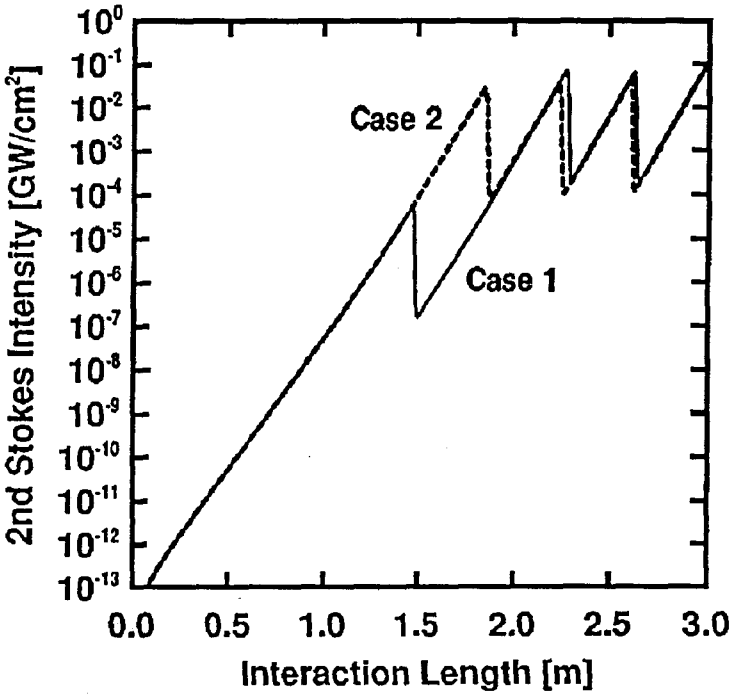
圧縮器内光軸上におけるダイクロイックミラーの位置を決定するために、前記（５－５１）式および（５－５２）式を用いて、光軸上の２次ストークス光利得を求めた。あわせて、シミュレーションコードを用いて光軸上の２次ストークス光強度分布を計算した。計算機シミュレーションによる２次ストークス光強度変化をＦｉｇ．５－２９に示す。横軸は増幅器内部の位置、縦軸は２次ストークス光強度の対数表示である。図中、光強度の不連続はダイクロイックミラーによる減衰を示す。ミラー１つあたりの減衰率は２次ストークス光利得に換算すると $\log_e(0.002) = -6$ に相当する。圧縮器内に配置した３枚のミラーによる減衰に打ち勝って２次ストークス光が発生するためには $G_2 = 43$ の利得が必要である。



Ｆｉｇ．５－２８　ダイクロイックミラーの波長選択性。
２次ストークス光（２９０ｎｍ）の透過率は０．２％である。励起光（２４８．５ｎｍ）および、１次ストークス光（２６８ｎｍ）は９５％以上透過する。

Ｆｉｇ．５－２９中で、Case１は１枚目のミラーを $G_2 = 20$ の位置に配置した場合を示す。一方、Case２は２次ストークス光強度がしきい値（１次ストーク

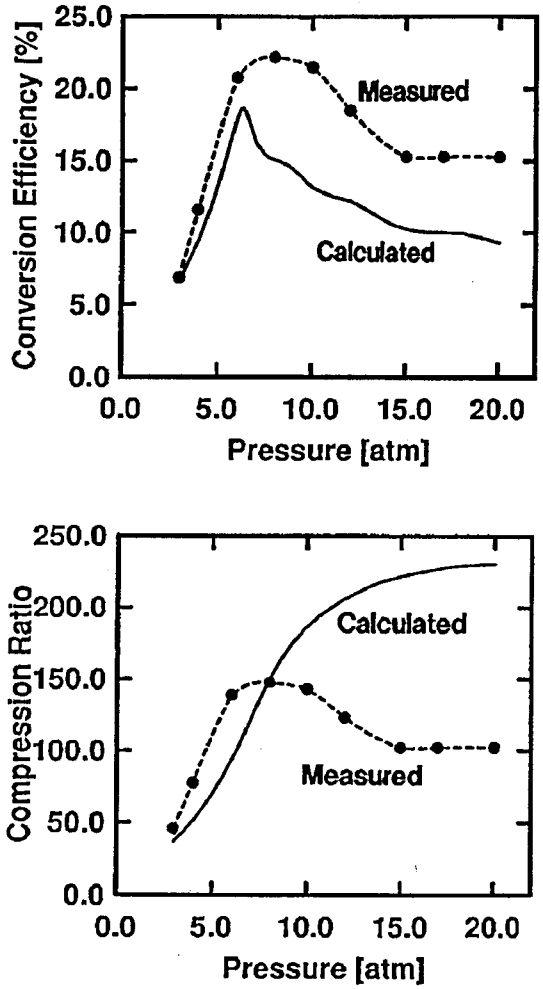
ス光強度の１％）に達する毎に、ダイクロイックミラーを１枚づつ配置した場合である。何れの配置でも増幅器出力端における２次ストークス光強度は等しい。増幅器の最初の部分では、自然散乱光強度の光軸上における加算と誘導散乱による指数増幅が重なり合い２次ストークス光強度の変化は利得長に対して非線形である。しかし、増幅による光強度の指数増加はその位置において発生する自然散乱光強度を上回るので、増幅につれて光強度の増加率は一定になり、光強度変化は単一指数関数に収斂する。これらの考察から、増幅器の入力端近くを除いてダイクロイックミラーの位置は位置は最終的な２次ストークス光強度に影響を及ぼさないことが分かった。



Ｆｉｇ．５－２９　ダイクロイックミラーの位置と２次ストークス光の強度分布。３枚のミラーを増幅器内部に配置した。

ダイクロイックミラーを用いて圧縮実験を行った。圧縮器の長さを３ｍにして励起光パルス幅を２０ｎｓに増加させた。ストークスパルス幅は前実験と同じ３０

ｐｓである。実験条件は励起光強度１５MW／ｃｍ^2、励起光線幅０．３ｃｍ$^{-1}$、入力ストークス光フルーエンス７．５ｍＪ／ｃｍ^{2}である。他の実験パラメータに変更はない。



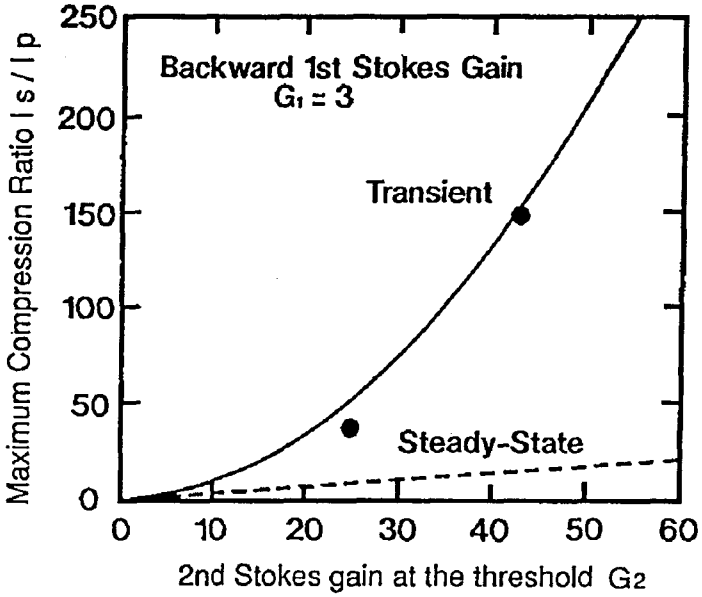
Ｆｉｇ．５－３０　圧縮率と変換効率。
励起光パルス幅は２０ｎｓ、
ストークス光パルス幅は３０ｐｓである。

メタン圧力に対するストークス光強度および変換効率の変化をＦｉｇ．５－３０に示す。圧力８ａｔｍの時に１次ストークス光強度２．２GW／ｃｍ^{2}が得られた。この時の変換効率は２２％であった。圧縮率は１５０倍に達した。

２次ストークス光発生しきい値以上（圧力１０ａｔｍ以上）の１次ストークスパルス幅は測定限界以下である。このため、測定された圧縮率は過小評価されている。シミュレーションコードよれば、２次ストークス光発生以後の圧縮率は２３０倍に達している。

Ｆｉｇ．５－３１に2次ストークス利得に対する圧縮率の変化を示す。●が測定値、実線は解析解である。実測された圧縮率１５０倍は、G_2＝４３、G_1＝３．６の増幅器について理論的に予測した２次ストークスしきい値における圧縮率１２

８にほぼ一致した。２次ストークスしきい利得に対する圧縮率のスケーリング則が実験的に示された。



Ｆｉｇ．５－３１　圧縮率の２次ストークス光しきい利得依存性。
実線、破線はそれぞれ過渡法、定常法の解析解を示す。

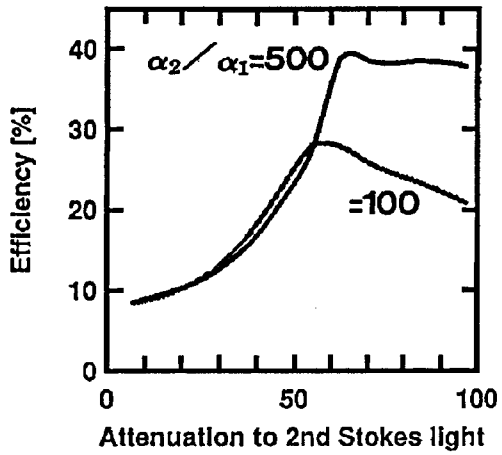
[4]　圧縮限界

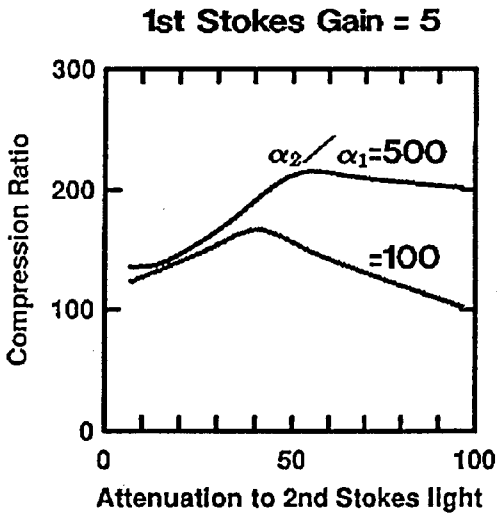
ダイクロイックミラーを用いた場合、圧縮限界は、ミラーが１次ストークス光に与える損失により制限される。ここでは、ダイクロイックミラーの性能と圧縮率の関係を定量評価する。

ダイクロイックミラーによる損失を分布定数として考える。ダイクロイックミラーによる１次ストークス光、２次ストークス光の損失係数をそれぞれ$\alpha 1$、$\alpha 2$と、とした時、それらの比Γ

$$\Gamma = \frac{\alpha_2}{\alpha_1} = \frac{\log T_{2s}}{\log T_{1s}} \qquad (5-53)$$

を用いてダイクロイックミラーを評価する。ここで、T_{1s}、T_{2s}はそれぞれ１次、２次ストークス光波長におけるダイクロイックミラーの透過率である。以下の計算条件はG_1＝５、τ_{1s}＝３０ｐｓ、T_2＝２５ｐｓ、T_{2b}＝１５ｐｓ、入力フルーエンスは０．１S_b、である。





Ｆｉｇ．５－３２　ミラーのΓ値と圧縮率。
圧縮率は２次ストークス光
しきい値における値を示す。

計算結果をＦｉｇ．５－３２に示す。横軸は、２次ストークス光の減衰量$\alpha_2 L$（Ｌは増幅器の長さ）である。実験値との対応を容易にするために、圧縮率は２次ストークス光のしきい値における値を用いた。実験に用いたミラーの特性に相当するΓ＝１００では、変換効率２８％、圧縮率１６０倍が上限であり、実験結果は理論限界値に近いことが明らかになった。

Γ＝５００のミラー（例えば、T_{2s}＝０．００２、T_{1s}＝０．９８７）を用いれば、変換効率４０％、圧縮率２２０が達成できる。第７章で示すように、紫外光学素子は発展段階にあり、その性能向上は日進月歩である。近い将来、高Γ値のミラーが実現出来よう。光学損傷しきい値は、現在でも問題ないレベルに達している。

５．３－３　まとめ

過渡領域においてＫｒＦレーザーの後方ラマンパルス圧縮実験を行い、過渡領域における後方ラマン圧縮法の有効性を示した。

[1] 後方散乱の利得帯域を励起光の線幅により可変できることを示した。測定した後方散乱の実効横緩和時間T_{2b}の値は、メタンのラマン線幅$\Delta\nu_r$、ドップラー幅$\Delta\nu_d$から求めた計算値に一致した。

[2] 励起光パルス幅６．７ｎｓ、ストークス光パルス幅３０ｐｓの時に、圧縮率３１、変換効率１８％を得た。１０倍を超える圧縮率が初めて得られた。このときの１次ストークス光利得は Frantz–Nodvik のモデルと良い一致を示した。同時に、２次ストークス光の発生しきい値は、過渡利得の解析解に一致した。これらの結果から、本パルス圧縮法の有効性を実証した。

[3] ２０ｎｓの励起光から３０ｐｓのストークス光へのパルス圧縮実験を行い、圧縮率１５０倍を得た。得られた圧縮率は解析解を用いた見積に一致した。２次ストークス光しきい利得に対する圧縮率のスケーリング則を実験的に示した。

[4] ダイクロイックミラーが１次、２次ストークス光に与える損失と、圧縮率の関係を考察した。実験で得られた圧縮率はダイクロイックミラーの損失により制限されていることを明かにした。１次ストークス光への損失係数と２次ストークス光への損失係数の比Γが５００のダイクロイックミラーを用いれば、圧縮率２２０倍、変換効率４０％が達成可能である。

５．４　むすび

ラマン利得の前方－後方非対称性を用いた新しい後方ラマンパルス圧縮法を提案した。

初めに、解析解を用いて２次ストークス光の過渡的抑制法、１次ストークス光の定常増幅法を検討した。過渡法と定常法の圧縮率を導出、比較し、過渡法の有効性を明らかにした。

[1] 後方１次ストークス光のパルス幅がラマン媒質の横緩和時間T_2よりも短い時間領域では、２次ストークス光の発生は過渡状態となって抑制される。この時の２次ストークス利得は１次ストークス光フルーエンスの平方根に比例し、光強度に依存しない。このため、短パルス１次ストークス光の増幅に適している。

一方、後方利得帯域は、ドップラー効果、励起線幅により広げることが可能であることを示した。このとき、増幅可能な最短パルス幅は、後方散乱の実効横緩和時間T_{2b}（$<T_2$）である。

[2] 本パルス圧縮法は１次ストークス光パルス幅t_{1s}が $T_{2b}<\tau_{1s}<T_2$ の範囲で有効であることを明らかにした。T_{2b}の最小値は前方１次ストークス光の発生により$T_2/4$に制限されることを示した。

[3] 最大圧縮率は後方１次ストークス光利得に反比例し、２次ストークス光発生のしきい利得の２乗に比例するスケーリング則を示した。この結果より、後方２次ストークス光に損失を与えことにより圧縮率を非線形に増加出来ることが分かった。

[4] ストークスパルス幅３０ｐｓに対してメタンが有効なラマン媒質である。このとき、前方１次ストークス光を抑制するために、励起光線幅$\Delta\nu_p$を１cm^{-1}以下に狭帯域化する必要がある。

次に、シミュレーションコードを用いて解析解の有効性を示し、適用限界を明らかにした。

[5] 過渡領域における後方１次ストークス光の増幅・飽和特性を計算により求め、Frantz−Nodvik のモデルと良い一致を示すことを明らかにした。この結果から、後方散乱はT_{2b}より長いストークスパルスに対して定常状態であること示した。同時に、２次ストークス光発生における過渡誘導ラマン散乱利得の解析解は１次ストークス光パルス幅がT_2より短い時間領域で有効であることを示した。

これらの結果より、上記解析解の有効性を示した。

[6] 最も高い圧縮率は後方１次ストークスパルス幅がT_{2b}から２T_{2b}の時間領域で得られることを明らかにした。

[7] 後方２次ストークス光は１次ストークス光から十分遅れて伝播する。後方１次ストークス光強度は２次ストークス光のしきい値を超えて増加し、解析的見積の２．５倍に達する圧縮率が得られることが分かった。

さらに、ＫｒＦレーザーのパルス圧縮実験を行い、２次スケーリング光利得に対する圧縮率のスケーリング則を実証し、圧縮限界を明らかにした。

[8] ６．７ｎｓから３０ｐｓへの圧縮実験を行い、圧縮率３１倍、変換効率１８％を得た。後方ラマンパルス圧縮において初めて１０倍を超える圧縮率が得られた。

[9] ダイクロイックミラーを用いてしきい値利得を４３に増加させ、圧縮率１５０倍、変換効率２２％を達成した。この結果より、後方２次ストークス光利得に対する圧縮率のスケーリング則を実験的に示した。

[10] ダイクロイックミラーが後方１次ストークス光に与える損失と、圧縮率の関係を考察した。１次ストークス光への損失係数と２次ストークス光への損失係数の比Γが５００のダイクロイックミラーを用いることにより、圧縮率２２０倍、効率４０％が得られることを示した。

参考文献

[1] J.R.Murray, J.Goldhar, D.Eimerl, and A.Szoke:
IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−15,pp.324−368(1979).

[2] R.H.Dicke:Phys.Rev.,vol.89,pp.11−17(1969).

[3] W.R.Trutna, JR.,Y.K.Park, and R.L.Byer:
IEEE J.Quantum Electron.,vol,QE−15,pp.648−655(1979).

[4] E.A.Stappaerts, W.H.Long,Jr., and H.Komie:Opt.Lett.,vol.5,pp.4−6(1980).

[5] J.R.Murray, J.Goldhar, and A.Szoke:Appl.Phys.Lett.,vol.32,pp.551−553(1978).

[6] J.R.Murray, J.Goldhar, D.Eimerl, and A.Szoke:Appl.Phys.Lett.,vol.33,pp.399−401(1978).

[7] R.L.Carman, F.Shimizu, C.S.Wang, and N.Bloembergen:
Phys.Rev.,vol.A−2,pp.60−72(1970).

[8] C.S.Wang:Phys.Rev.,vol.182,pp.482−494(1969).

[9] N.J.Everall, J.P.Partanen, J.R.M.Barr, and M.J.Shaw:
Opt.Commun.,vol.64,pp.393−97(1987).

[10] L.R.Marshall, and J.A.Piper:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−26,pp.1098−1104(1990).

[11] L.R.Marshall, and J.A.Piper:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−26,pp.1827−1832(1990).

[12] B.Bobbs and C.Warner:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−24,pp.660−664(1988).

[13] M.D.Duncan, R.Mahon, L.L.Yankersley, and J.Reintjes:
J.Opt.Soc.Am.B,vol.5,pp.37−52(1988).

[14] J.Rifkin, M.L.Bernt, D.C.MacPherson, and J.L.Carlsten:
J.Opt.Soc.Am.B,pp.1607−1612(1988).

[15] N.Morita, L.H.Lin, and T.Yajima:Appl.Phys.B,vol.B31,pp.63−67(1983).

[16] P.G.May and W.Sibbett:Appl.Phys.Lett.,vol.43,pp.624−626(1983).

[17] Y.Taira, F.Uchikoba, and H.Takuma:Jpn.J.Appl.Phys.,vol.26,pp.1807−1810(1987).

[18] R.G.Wenzel and J.M.Telle:J.Opt.Soc.Am.B,vol.3,pp.1483−1488(1986).

[19] Y.Taira, K.Ide, and H.Takuma:Chem.Phys.Lett.,vol.91,pp.299−301(1982).

[20] J.P.Partanen, and M.J.Shaw:J.Opt.Soc.Am.B,vol.3,pp.1374−89(1986).

[21] M.G.Raymer, and J.Mostowski:Phys.Rev.A,vol.24,pp.1980−1993(1981).

第６章　光音響法を用いたシングルショット自己相関計の開発

超短パルス光の測定手段としてストリークカメラが知られるが、１ｐｓあるいはそれ以下の時間領域ではなお分解能が不足するので、非線形相関法が用いられる。これらの多くは、赤外あるいは可視域のモードロックレーザー等に適用され、１００ＭＨｚ前後の繰り返しパルスを用いたサンプリング計測である。しかし、超短パルスＫｒＦレーザーシステムには、紫外域のみならず、増幅器の繰り返し速度の点で、シングルショット計測が求められる。

本章ではＫｒＦレーザーシステムのパルス幅計測に用いる紫外シングルショット自己相関計の開発について述べる。本実験は光音響法を用いたシングルショット自己相関計の初めての実施例である。

６．１　シングルショット自己相関計の原理

６．１－１　光音響法

光音響法（ Photo−acousitc　Method ）は蛍光法と並んで広く吸収計測に用いられている。物質を励起すると一部のエネルギーは蛍光となるが、他のエネルギーは熱に変換される。この熱膨張による音波が光音響波である。パルス光で励起すれば、その時間に対応した粗密波を発生するので、外乱との識別が容易である。吸収エネルギーのほとんどが音響エネルギーに変換されるから、非常に高感度な吸収測定法である。

石英や水はほとんど蛍光を発しないばかりか、音響的な損失も非常に小さく優秀な光音響媒質である。石英および水のバンドギャップはそれぞれ７．８ｅＶ、１０ｅＶであるので、ＫｒＦレーザーの光子エネルギー５ｅＶに対して透明である。加えて、不純物等による残留吸収も極めて少ない。これらの媒質中の２光子吸収を非線形検出器として利用することは容易である。

６．１－２　パルス幅の測定限界

測定できる最小パルス幅を制限する要素として

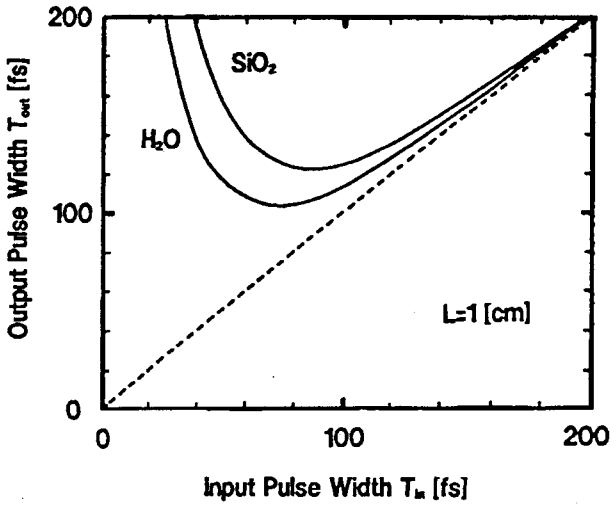
①自己位相変調（ＳＰＭ）によるチャープ

②線形分散によるパルス広がり

③測定媒質中の群速度分散

が考えられる。これらの原理はすでに第２章で述べた。ＫｒＦレーザー波長でこれらの制限を考察すると、

①は光強度が高い場合に問題になる。また、レーザー光の波長に反比例するので、紫外域で著しい。非線形媒質、例えば厚さＬが１ｃｍの石英中のＳＰＭのしきい値は１６GW／ｃｍ^{2}であるから、光強度を数GW／ｃｍ^{2}以下に抑える必要がある。



H_2O　$d^2n/d\lambda^2 = 7.1\times10^{12}$ [m^{-2}]

SiO_2　$d^2n/d\lambda^2 = 9.9\times10^{12}$ [m^{-2}]

Ｆｉｇ．６－１　群速度分散によるパルス広がり。

②自己相関計内部の光学素子（プリズム、ミラー）等による線形分散は、光強度に無関係にレーザーパルスを広げる。しかし、相関形内部の分散と符号の異なる分散素子を挿入して補正が可能である。

③測定媒質自身による群速度分散は外部で補正できない。ＳＨＧ法等では基本波と高調波の間の群速度分散まで考慮する必要がある[1)]。しかし、光音響法や多光子吸収法では基本波についてのみ考慮すれば良い。水を例にとると、２次の分散は$d^2n/d\lambda^2 = 10^{13}m^{-2}$である。Ｆｉｇ．６－１に示すように媒質長が１ｃｍの

場合、１０％のパルス広がりを生ずる入力パルス幅は１００ｆｓである。必要な媒質長Ｌは測定ビームのエネルギーに反比例するので、感度を減ずればさらに短パルスまで測定可能である。

以上の考察から、光強度をＳＰＭのしきい値以下に抑えれば１００ｆｓパルスが測定可能であることが分かる。

６．１－３　２次の自己相関法

２次の自己相関法[2)]について相関幅とパルス幅の関係をまとめる。今、入力レーザーパルスの電界を

$$E(t) = \frac{1}{2} A(t) \exp\{i[\omega t + \phi(t)]\} + c.c \qquad (6-1)$$

とする。このレーザーパルスを２つに分け、τの時間差を持って２光子吸収媒に入射させると、発生する光音響信号の強度I_{PAS}は

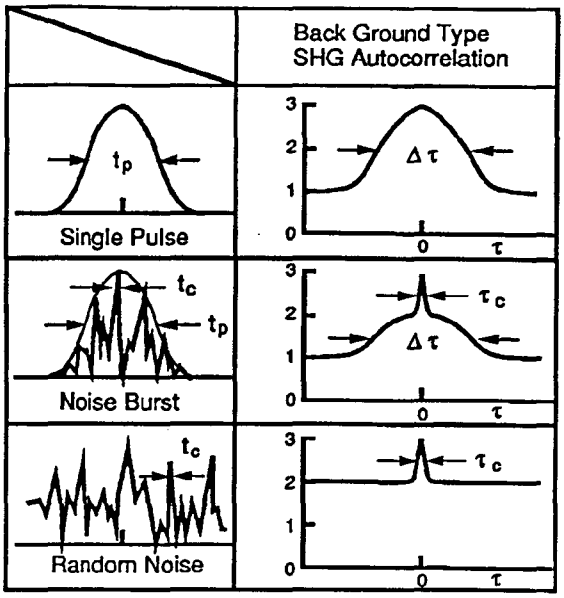
$$I_{PAS}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} |\{E(t)+E(t-\tau)\}^2|^2 \, dt$$

$$\propto \int_{-\infty}^{\infty} \{I^2(t) + I^2(t-\tau)\} dt + 4G^{(2)}(\tau) \qquad (6-2)$$

$$G^{(2)}(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{\infty} I(t) I(t-\tau) \, dt \qquad (6-3)$$

である。$I(t)$は$|E(t)|^2$に比例する。（６－２）の第１項は背光成分となり、それに重畳して第２項で示される強度自己相関関数$G^{(2)}(\tau)$が得られる。

Ｆｉｇ．６－２に示すように$G^{(2)}(\tau)$はレーザパルス波形が非対称であっても常に対称型である。$G^{(2)}(\tau)$はレーザー電界の位相情報を含んでおり、$G^{(2)}(\tau)$のコントラスト比や形から入力パルスの時間的構造を知ることが出来る。時間構造がある場合、$\tau=0$近くにコヒーレント長に相当するスパイクが現れる。この場合、$G^{(2)}(\tau)$の裾の部分の半値全幅がレーザパルスの相関幅に相当する。



Ｆｉｇ．６－２　パルスの時間構造と２次の自己相関関数。

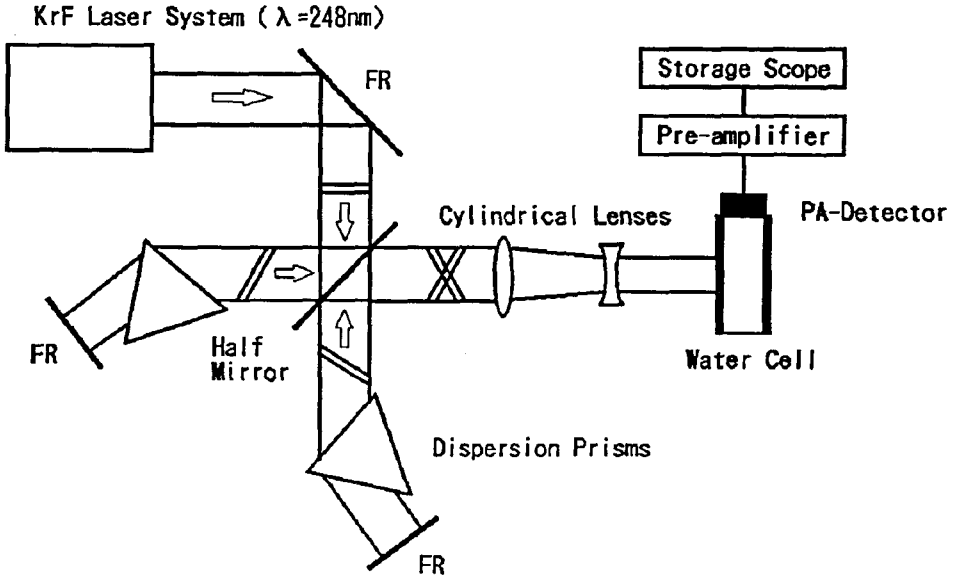
自己相関波形は入力パルスの形の情報も含んでいるが、時間積分されていること、２次関数であるので低光強度部分（自己相関関数の裾の部分）のＳ／Ｎが低下すること、等の条件から入力波形とパルス幅を同時に求めることは実用上困難である。一般に、入力パルス波形を仮定してパルス幅を算出する。パルス波形としてｓｅｃｈ^{2}型を仮定した場合、相関幅$\Delta\tau$とレーザパルス幅ｔ$_p$の間には、$\Delta\tau=1.55t_p$の関係がある。

６．２　実験装置

６．２－１　自己相関計の構成

自己相関計測の配置図をＦｉｇ．６－３に示す。マイケルソン干渉計の各辺にプリズムを挿入してビーム断面方向に空間的に時間遅延を作った。時間遅延はビーム

の中央で零、図中上下端で最大になる。



Ｆｉｇ．６－３　シングルショット自己相関計の構成。
時間遅延はビームの断面方向に与えられ、中央部で零である。

プリズムによる時間遅延（横分散）ｔｄはプリズムの底辺の長さをａとし、光がプリズム全体に渡って照射された時

$$t_d = -\frac{a}{c}\lambda\frac{dn}{d\lambda} \qquad (6-4)$$

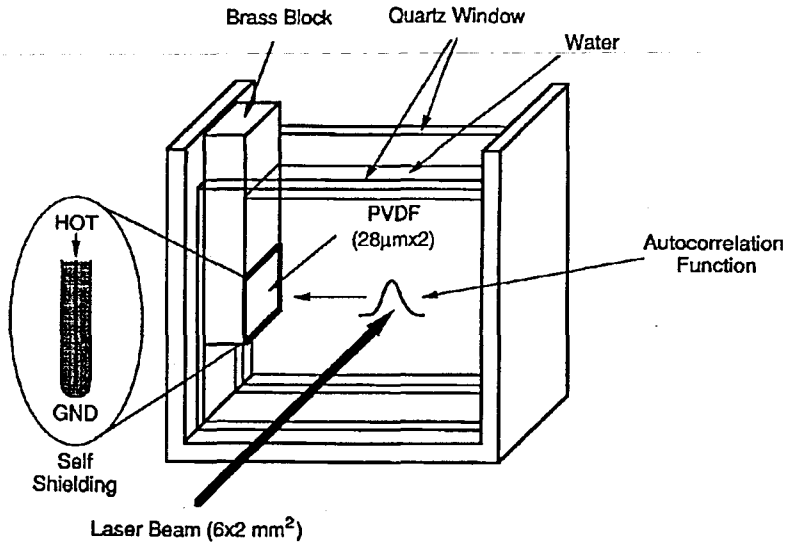
である。[3] ここでｃは光速、λは光の波長、ｎはプリズムの屈折率である。２５０ｎｍにおける屈折率n_{250}は１．５０９であり、分散ｄｎ／ｄλは－６．５×10^{-4} nm^{-1}である。例えば、ＫｒＦレーザー波長においてａ＝１ｃｍは、横分散ｔｄ＝５．３ｐｓに相当する。Ｆｉｇ．６－３の配置では、入力光パルスはプリズムを２度通過し、さらに、２つの腕の横分散は逆方向であるから、与えられる時

間遅延は（６－４）式の４倍である。

重ね合わせた２つのビームは、円筒レンズ系を用いて高さ２ｍｍ、幅６ｍｍの平行ビームにして光音響検出器に入射させた。

６．２－２　光音響検出器

非線形検出器として水中の多光子吸収によって発生する光音響波を用いた。水中では固体のような横波（shear　wave：せん断波）が伝播しないので石英に比べ波形観測が容易である。実際に用いた光音響検出器の構造をＦｉｇ．６－４に示す。厚さ１０ｍｍ、幅４０ｍｍの水セルで、厚さ３ｍｍの石英窓を持ったステンレス製である。自己相関関数はレーザービームと垂直方向に発生する光音響信号の波形として検出した。



Ｆｉｇ．６－４　光音響検出器の構成。

音響波の検出にはＰＶＤＦ（Polyvinylidene Difluoreide：ポリフッ化ビニリデン）ピエゾフィルムを用いた。ＰＶＤＦの音響インピーダンスはＺｆ＝３．９２×

$10^6 Nsm^{-3}$である。他のピエゾ素子（ＰＺＴ、ＢａＴｉＯ3等）に比べて、音響インピーダンスが１桁以上低く、水とのインピーダンス整合性が比較的良い。水の音響インピーダンス$Z_W = 1.5 \times 10^6 Nsm^{-3}$に対して、振幅反射係数Γは

$$\Gamma = \frac{Z_f - Z_W}{Z_f + Z_W} = \frac{3.92 - 1.5}{3.92 + 1.5} = 0.45 \quad (6-5)$$

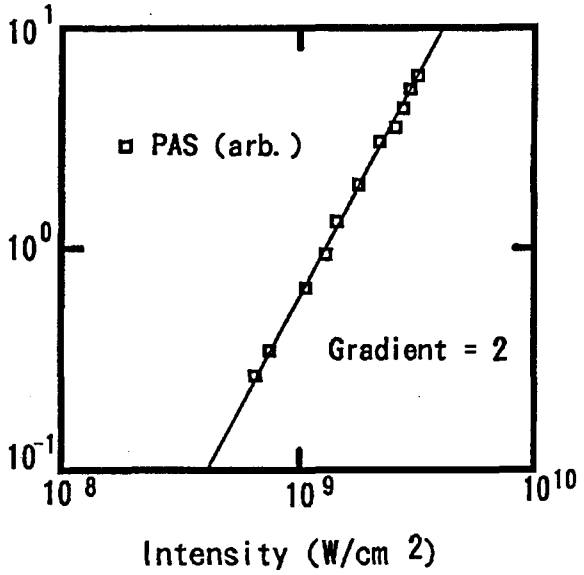
である。さらに内部損失が大きいので、共振を生じ難い利点がある。厚さ２８μｍのＰＶＤＦフィルム（KYNAR　Ni/Cu電極）を用い、Ｆｉｇ．６－４左に示すように２つ折りにして静電的に遮蔽した。検出面の大きさは１ｃｍ角である。ＰＶＤＦ膜は音響インピーダンスが高い真鍮（$Z_B = 40 \times 10^6 Nsm^{-3}$）の上に、膜とインピーダンスの等しいエポキシ接着材を用いて固定した。膜と真鍮の間では、ほぼ全反射（Γ＝０．９３）が起こるので、測定感度を約２倍向上させることができる。出力電圧は入力インピーダンス１ＭΩ、利得４０ｄＢのプリアンプによって増幅した後、オシロスコープ（Tektronix 7104）により観測した。レーザー光は膜表面から３ｃｍの点を膜と平行に通した。

６．２－３　光音響検出器の感度および空間分解能

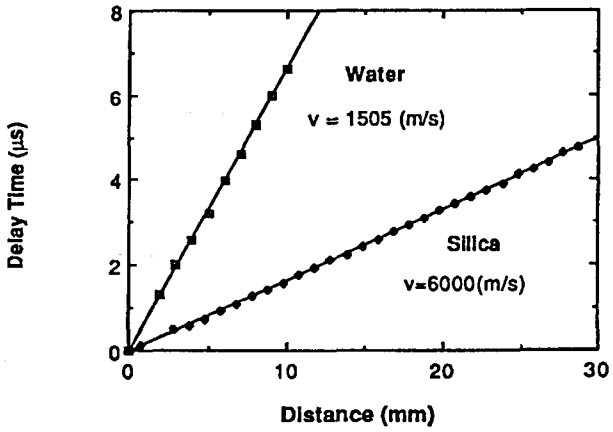
光音響検出器にＫｒＦレーザー光を照射して、その非線形応答および空間分解能を測定した。

入力光強度に対する光音響出力の変化をＦｉｇ．６－５に示す。レーザーパルス幅は２ｐｓである。縦軸、横軸とも対数表示であるので測定値の傾きは多光子吸収の次数を表している。入力光強度が僅か６００MW／cm^2でも２光子吸収が観測され、多光子励起蛍光法[4)5)6)]が要する１００GW／cm^2の励起光強度に対して２桁以上高感度である。原理的な検出限界は、光音響材料の線形吸収と多光子吸収が等しくなる光強度Ｉｃであり、Ｉｃは光音響材料の線形吸収係数αと２光子吸収係数βの比Ｉｃ＝β／αで与えられる。水の場合、Ｉｃは１３０MW／cm^2 [7)]であるから、実験で得られた測定感度は検出限界の６倍に相当する。

膜表面からレーザー光照射位置までの距離と光音響波の時間遅延を測定した。結



Ｆｉｇ．６－５　水の２光子吸収。
１ＧＷ／ｃｍ²以下の光強度でも
２光子吸収を観測できる。



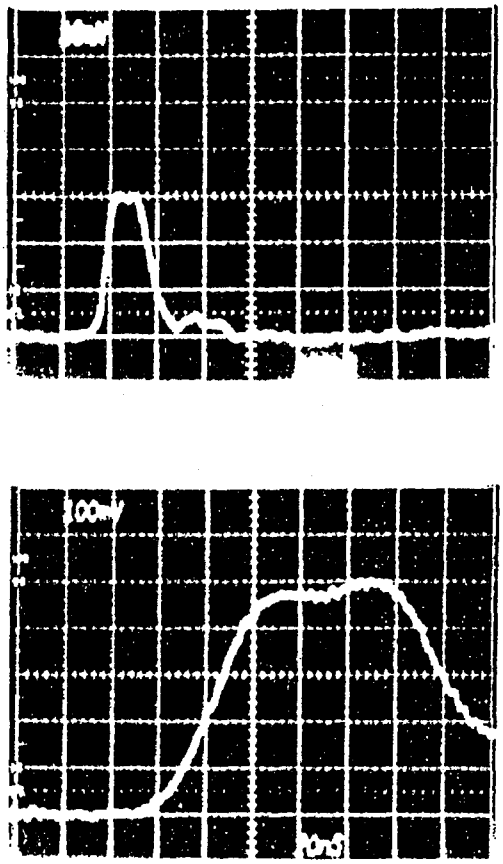
Ｆｉｇ．６－６　音響波の伝播距離と時間遅延。

果はＦｉｇ．６－６に示すように完全に直線であり、検出した音響波は直接波であることが明かである。最小自乗解析によって求めた水中の音速は１５００ｍ／ｓで、石英中の１／４であった。

次に、空間分解能を測定した。石英セルの直前に１００μｍ幅の光学スリットを設け、これを高さ２ｍｍの平行ビームにより照射して発生する光音響波の時間幅を計測した。結果をＦｉｇ．６－７に示す。上下のトレースは同じ波形で、横軸はそれぞれ、（上）１００ｎｓ／ｄｉｖ．、（下）２０ｎｓ／ｄｉｖ．である。矩形波が観測され、それに続いて僅かなリンギングが現れた。リンギングは膜の両面の反射により生じた膜内部の定在波である。矩形波の立ち上がり時間およびパルス幅の半値全幅はそれぞれ４０ｎｓ、１１０ｎｓであった。立ち上がり時間は膜中の音響波の伝播時間２２．５ｎｓと帯域幅２０ＭＨｚのプリアンプの応答によって制限されている。立ち上がり時間４０ｎｓは空間分解能６０μｍに相当する。この分解能はリニアーイ

メージセンサーやＣＣＤカメラの分解能に匹敵する。

膜厚を減じ、広帯域増幅器を用いればさらに高い空間分解能が得られる。但し、感度・帯域積は一定であるから、分解能に反比例して測定感度は低下する。



Ｆｉｇ．６－７　光音響検出器の空間分解能。

上図の横軸は１００ｎｓ／ｄｉｖ．、空間的には１５０μｍ／ｄｉｖ．に相当する。

下図に立ち上がり部分を２０ｎｓ／ｄｉｖ．（３０μｍ／ｄｉｖ．）に拡大して示す。

立ち上がり時間は４０ｎｓであり、空間分解能６０μｍに相当する。

膜とレーザービームの距離が１ｃｍ以上では、検出感度はそれらの間の距離に依存しなかった。今、膜の大きさを１辺２ａの正方形とすれば、その感度の角度依存性Ｓ（θ）は

$$S(\theta) = \frac{\sin[ha \sin\theta]}{ha \sin\theta} \qquad (6-6)$$

で与えられる。ここで、ｋは伝搬定数：$k = 2\pi/\lambda_a$、λ_aは音波の波長である。$S(\theta_h) = 0.5$のを与える角度θ_hは、$ka \sin\theta_h = 1.9$の時である。λ_aの最大値は自己相関幅Ｗのほぼ２倍であるから、θ_hは

$$\theta_h = \sin^{-1}\left[\frac{1.9W}{\pi a}\right] \qquad (6-7)$$

である。膜に十分な大きさがあり、$a/W > 5$を満たすならば、膜は平面波成分のみを検出する。（$a/W = 5$の時、$\theta_h/\pi = 0.04$である。）

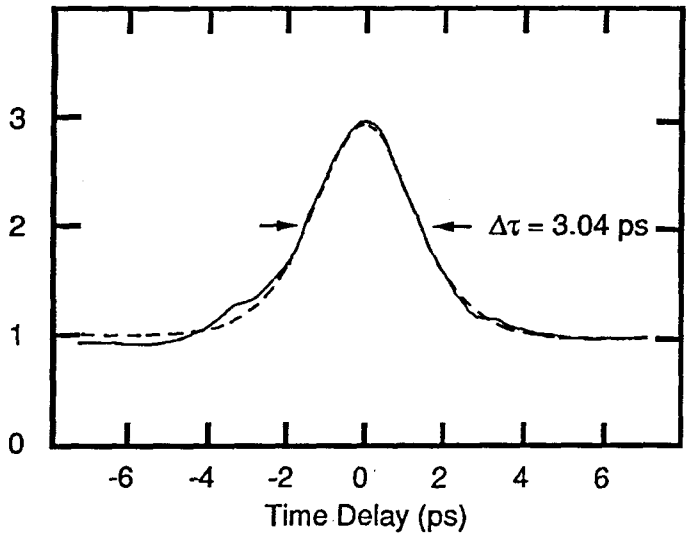
本音響検出器はこのように超指向性マイクロフォンとして動作するので、音源からの距離Ｒに対して１／Ｒの感度補正をする必要がなく、音響波の波形を正確に検出できる。

６．２－４　シングルショット自己相関計測

短パルスＫｒＦレーザー光のパルス幅を実際に測定した。得られた自己相関関数をＦｉｇ．６－８に示す。横軸は時間遅延、縦軸は音響波の強度を示す。背景成分とピーク値のコントラスト比は３対１で２次の自己相関関数の理論値と一致した。時間軸の校正は、干渉計の片方の腕に厚さ２ｍｍの石英板を挿入し、その時の自己相関関数の空間的シフトを計測して行った。パルスは石英板と空気の光学長の差の２倍（往復）に相当する時間遅れるから、時間遅延τは

$$\tau = \frac{2(n-1)L}{c} \qquad (6-8)$$

である。ここで、ｎは石英板の屈折率ｎ＝１．５０９、Ｌは厚さ、ｃは光速である。得られた自己相関関数の半値全幅はΔτ＝３．０４ｐｓであった。パルス波形としてＧａｕｓｓ型およびｓｅｃｈ^{2}型を仮定して数値計算を行った結果、ｓｅｃｈ^{2}型で実験値と良い一致が得られた。Ｆｉｇ．６－８中の点線は計算したパルス幅１．９７ｐｓのｓｅｃｈ^{2}型パルスの自己相関関数である。裾の部分に見られる相違は左右対称であるから、入力レーザーパルスの形に起因するものと考えられる。



Ｆｉｇ．６－８　シングルショット自己相関関数。
実線はパルス幅１．９６ｐｓ、
ｓｅｃｈ^{2}形パルスの計算値である。

Ｆｉｇ．６－８の自己相関関数はレーザーエネルギーは０．２ｍＪで測定出来た。パルス幅を２００ｆｓまで減ずれば、必要なエネルギーは２０μＪであって、他の測定法に比べて１桁から２桁低いエネルギーで測定可能である。小エネルギーのレーザーシステムに用いてもでも、出力エネルギーを浪費することなく常時出力パルス幅を観測することが可能である。

６．３　むすび

光音響法をシングルショット自己相関計に初めて応用し、ＫｒＦレーザーの自己相関関数を測定した。

[1] 水は群速度分散は小さく、媒質長１ｃｍで１００ｆｓまで計測可能である。

[2] 水とＰＶＤＦフィルムを用いた光音響検出器を開発し、ＣＤＤに匹敵する空間分解能は６０μｍを得た。検出感度は分解能に反比例して減少するが、フィルムの厚さを減ずることによりさらに高い分解能が期待出来る。

[3] 多光子励起蛍光法に比べ約２桁高い測定感度を実現した。高感度化により、従来問題であった非線形媒質の劣化、ＳＰＭの発生を抑制した。得られた感度は水の線形吸収による限界値に近い値であった。

[4] ＫｒＦレーザーのパルス幅を実測して、本パルス圧縮法の有効性を示した。

参考文献

1) A.M.Weiner:IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−19,pp.1276−83(1983).

2) D.J.Bradley and G.H.C. New:Proc.IEEE,vol.62,313(1974).

3) Z.Bor and B.Racz:Opt.Comm.,vol.54,pp.165−170(1985).

4) N.Sarukura, M.Watanabe, A.Endoh, and S.Watanabe:Opt.Lett.,vol.13,996(1988).

5) S.P.Le Blanc, G.Szabo, and R.Sauerbrey:Opt.Lett.,vol.16,1508(1991).

6) H.Schulz, H.Schuler, T.Engers, and D.von der Linde:
IEEE J.Quantum Electron.,vol.25,2580(1989).

7) I.Buchvarov, S.M.Saltiel, V.E.Gusev, and V.T.Platonenko:J.Phys.D,vol.22,1423(1989).

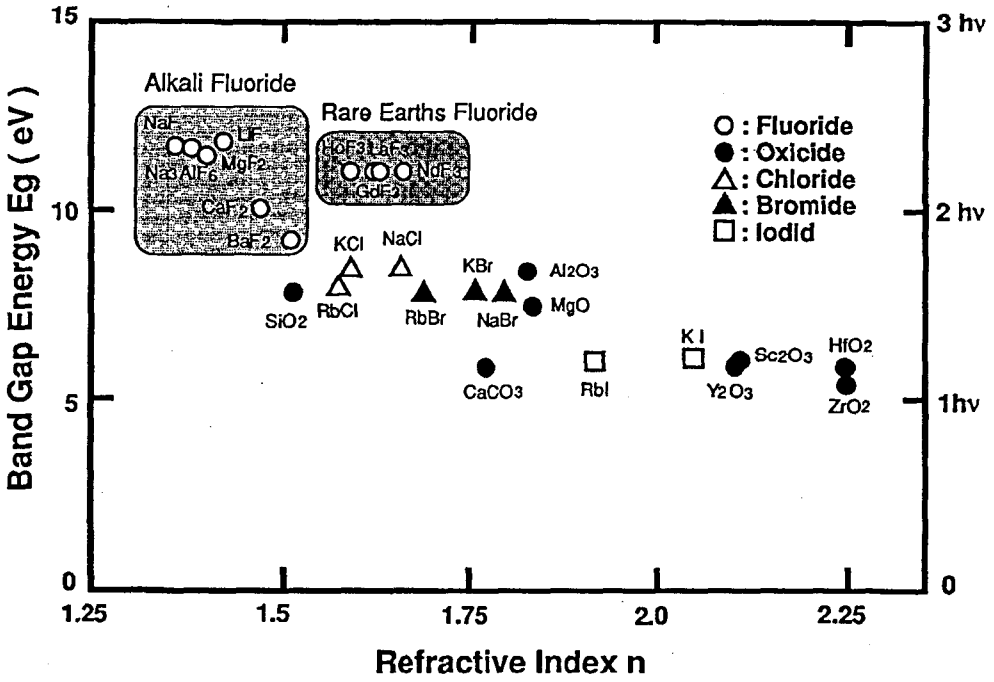
第７章　紫外光学素子の吸収損傷機構

本章では、光音響法を用いて光学素子内部の多光子吸収を高感度で測定すると共に、光電流法を用いて吸収の時間変化を観測する。これら非線形吸収の定量的測定を通じて、光学損傷機構を明かにし、光学素子高耐力化の方向を探る。

７．１　紫外光学材料

初めに、紫外光学材料および紫外誘電体多層膜鏡の特徴についてまとめる。

紫外光は光子エネルギーが高いので透過光学材料は多くはない。ＫｒＦレーザー波長で透明な材料をＦｉｇ．７－１に示す。



Ｆｉｇ．７－１　紫外光学材料の屈折率とバンドギャップ。
ＫｒＦレーザーの光子エネルギーｈνの倍数を右の縦軸に示す。

図の横軸はＫｒＦレーザー発振波長における屈折率、縦軸は材料の励起エネルギーである。右側縦軸はＫｒＦレーザーの光子エネルギー（ｈν＝５ｅＶ）を単位として表示してある。一部のフッ化物結晶を除き、ほとんど全ての光学材料が２光子で励起される。必要な光子数が少ないので、赤外・可視域[1]に比べて多光子吸収の確率は非常に高い。[2)3)]バンドギャップは周期表に従って、Ｆ，Ｃｌ，Ｂｒ，Ｉ，そしてＯの化合物の順に小さくなる。レーザー波長が材料の吸収端に近いので、共鳴効果によって屈折率はバンドギャップと負の相関関係を示す。言い換えると、バンドギャップが狭い材料は屈折率が高く、吸収係数も大きい。実際には、純粋物質のバンドギャップ内に励起子等の吸収帯が存在し[4)5)]、これによる吸収や屈折率の増加も加わる。

誘電体多層膜鏡は高屈折率n_H、低屈折率n_Lの２つあるいはそれ以上の種類の光学材料をλ／４（λ：レーザー波長）の光学長で交互に重ね、層間で生じる反射光の位相を揃えて高い反射率を得る鏡である。２つの膜の屈折率の比が大きい程、単一境界の反射率が高くなるので全層数は少なくて済む。同時に、このようなミラーは入射角の許容範囲も大きいので実用上便利である。しかし、レーザー耐力の観点から見ると、高屈折率膜の吸収が大きく問題である。

膜構成の具体例を挙げると、汎用のミラーにはHfO_2／SiO_2の組み合わせが用いられる。一方、高耐力ミラーにはHfO_2に比べて吸収の少ないAl_2O_3／SiO_2（MgF_2）等の組み合わせが用いられることが多い。

電界強度のピークはＨ／Ｌ膜の境界に一致するので、全反射鏡では損傷は最初のＨ／Ｌ境界面に生ずることが多い。膜厚を意図的にλ／４から外す（non−quartor wave layers）ことによって高耐力化が図れる。しかし、Ｈ／Ｌ屈折率比の小さいミラーと同様に、使用できるバンド幅や入射角の許容範囲が狭くなる。

７．２　光音響法を用いた吸収および損傷しきい値の測定

紫外では多光子吸収や、光Ｋｅｒｒ効果による自己集束等[6)]の非線形吸収が生じ

易い。これら損傷原因を評価するには、レーザー鏡の損傷しきい値の測定に加え、損傷に至るまでの吸収量変化を観測する必要がある。第２章で述べたように、レーザー損傷の要因である吸収はその絶対量が微小であり、高感度な吸収測定法が強く望まれる。

ここでは、非線形吸収を光音響法を用いて高感度に測定し、紫外レーザー損傷の原因を実験的に考察する。

７．２－１　光音響法

光音響法は１８８１年にW．C．Ｒｏｎｔｇｅｎらによって発見された方法で、吸収分光、ラマン分光や、非線形分光法に用いられる。[7)8)]最近では、非破壊検査や光音響顕微鏡等[9)10)11)]へ応用されている。前章で述べたように吸収された熱エネルギーを観測するので、感度が極めて高い。[12)13)14)]さらに、測定値は光学薄膜自身の散乱損失を含まないので、微小吸収を正確に評価することができる。

窓材料やミラー基板の音響インピーダンスは空気に比べて非常に高いので、発生した音波は基板表面で全反射して試料内部に閉じこめられ、定在波となる。

音響波の検出法には、媒質内部の粗密がもたらす屈折率変化を利用して干渉的に計測する方法や、マイクロフォンや圧電素子を用いて直接計測する方法等がある。前者は、音響波の振幅の分布を正確に測定できる。一方、後者の接触法は検出感度が高い。ＰＺＴ等の強誘電体では、内部の音響損失が小さく、静電容量が高いので、圧電効果を介して共振が生ずる。このピエゾ共振を用いて測定すると、波形は歪むが高感度が得られる。例えば、１ｍＪ程度のレーザーエネルギーで10^{-4}オーダーの微小吸収計測ができる。[15)]その反面、吸収の絶対量を求めることが難しい。絶対値校正の理論等[16)]もあるが、試料の形状や機械的定数、定在波のモード等を考慮すると精度は十分ではない。一般に、吸収係数が既知の媒質を用いて相対的な感度校正を行う。

7．2－2　多光子吸収の解析

ここでは、光音響法による測定値を透過率法で絶対校正するために、試料透過率の光強度依存性から多光子吸収量を解析的に求める方法について簡単にまとめる。

n光子吸収による光強度変化は光の伝播方向をzとして

$$\frac{dI}{dz} = -\sigma_n N \left(\frac{I}{h\nu}\right)^n \qquad (7-1)$$

と書き表せる。ここで、Iは光強度、$h\nu$は光子エネルギー、σ_nはn光子吸収断面積、Nは吸収媒質の密度である。n＝1の場合が通常観測される線形吸収である。

吸収量が微小な場合、光強度と吸収量はn乗の関数である。一方、吸収が大きく、伝搬中の光強度変化が無視できない場合は以下の手法による。

2光子吸収の場合を考えると、βを2光子吸収係数として光強度の間に

$$\frac{dI}{dz} = -\beta I^2 \qquad (7-2)$$

が成り立つ。厚さtの媒質を考えるとその出力光強度I_{out}は入力光強度をI_{in}として

$$I_{out} = \frac{I_{in}}{1+\beta t I_{in}} \qquad (7-3)$$

と書き表せる。I_{out}/I_{in}を透過率Tとおけば、1／TとI_{in}の関係は次のように直線で表示できる。

$$\frac{1}{T} = \frac{I_{in}}{I_{out}} = 1+\beta t I_{in} \qquad (7-4)$$

この直線の傾きは２光子吸収係数と厚さの積βｔを示している。

同様にγを３光子吸収係数として

$$\frac{dI}{dz} = -\gamma I^3 \qquad (7-5)$$

$I_{in}{}^2$に対して直線化して

$$\left(\frac{1}{T}\right)^2 = \left(\frac{I_{in}}{I_{out}}\right) = 1+2\gamma t I_{in}^2 \qquad (7-6)$$

を得る。$1/T^2$直線傾きから$2\gamma t$を求めることができる。

７．２－３　被測定試料

Ｔａｂｌｅ　７－１に示す試料について測定を行った。紫外域で汎用されるＨｆＯ2／ＳｉＯ2、高耐力ミラーＡｌ2Ｏ3／ＳｉＯ2（ＭｇＦ2）等の組み合わせに加え、２光子エネルギー以上のバンドギャップを持つフッ化物系ミラーについて吸収測定を行った。

Ｔａｂｌｅ　７－１　被測定試料

フッ化物系全反射鏡	ＬａＦ3／Ｎａ3Ａｌ Ｆ6 ＧｄＦ3／Ｎａ3Ａｌ Ｆ6
酸化物系全反射鏡	Ａｌ2Ｏ3／ＭｇＦ2 ＨｆＯ2／ＳｉＯ2
合成石英窓材 （ＳｉＯ2）	High Grade（１Årms） Standard　（３Årms）

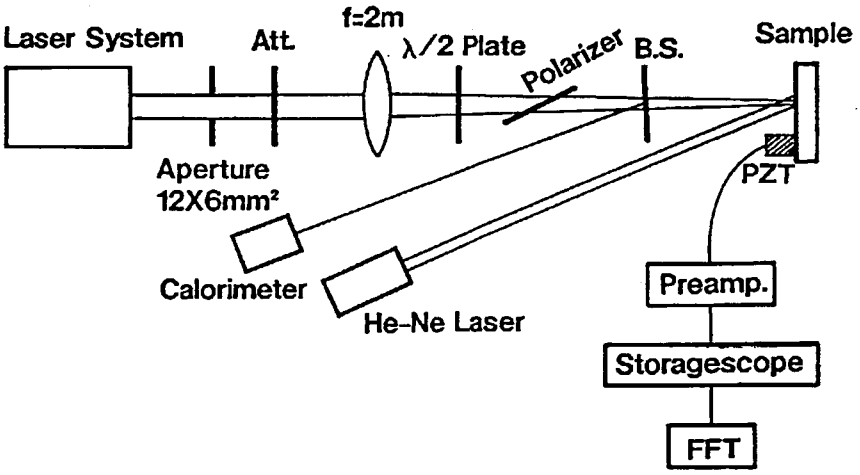
光学薄膜の吸収係数は基板に比べて著しく大きいが、吸収長すなわち総膜圧は１０μm程度なので全吸収量は微小である。基板の吸収が与える測定誤差を避ける為に、全ての鏡を全反射鏡とした。基板にはＫｒＦレーザー波長で最も線形吸収の小さい合成石英を用いた。基板の多光子吸収は、膜の反射率が９８％以上であるため無視できる。

全ての多層膜は電子ビーム蒸着により形成した。設計入射角は０°である。[17] Ｔａｂｌｅ ７－１ 中の"High Grade"、"Standard"は合成石英窓材の表面粗さを表し、それぞれ、１Å、３Åである。

７．２－４ 測定装置

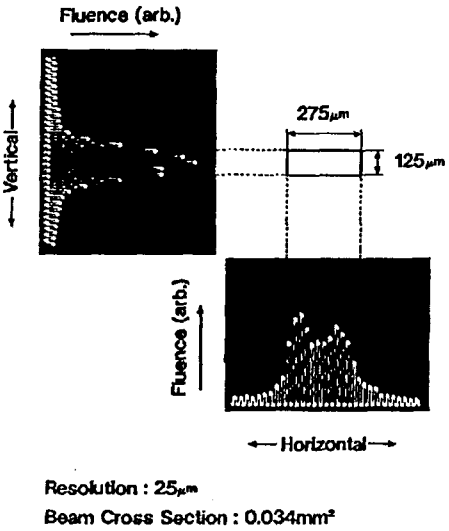
[1] レーザー及び集光系

従来のナノ秒領域における損傷機構とピコ秒領域の短パルスレーザー損傷を比較する為に、レーザーパルス幅２０ｎｓおよび１．７ｐｓの２つの条件で測定した。光音響法による吸収測定の配置図をＦｉｇ．７－２に示す。

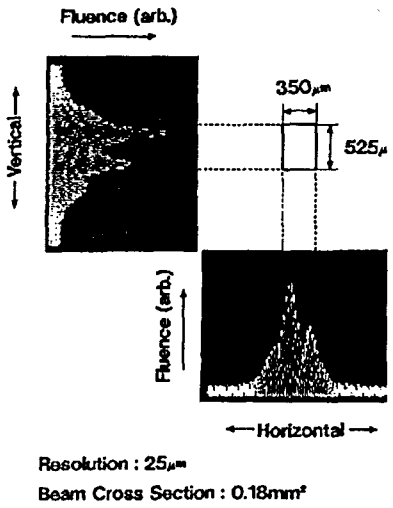


Ｆｉｇ．７－２ 光音響法による吸収の測定配置。

ナノ秒パルスの照射実験には、放電型ＫｒＦレーザー（ Lambda Physik EMG−150EST ）を用いた。注入同期により横モード、縦モードを制御した。ビーム広がり角はレーザー立ち上がり初期から１００μｒａｄ以下である。また、レーザー線幅は０．３ｃｍ$^{-1}$である。レーザーから１０ｍ離れた集光レンズ上では、ＡＳＥは全く検出されない。ピコ秒照射に用いたレーザーは第５章で用いたレーザーと同一である。両レーザーともに直線偏光で動作させ、Ｆｉｇ．７−２中に示したλ／２板と偏光子を用いて連続的に照射光強度を変化させた。入出力光エネルギーはカロリーメーター（ GENTEK ED−100 および ED−200 ）を用いて測定した。



Ｆｉｇ．７−３　照射強度分布。（ピコ秒レーザー）



Ｆｉｇ．７−４　照射強度分布。（ナノ秒レーザー）

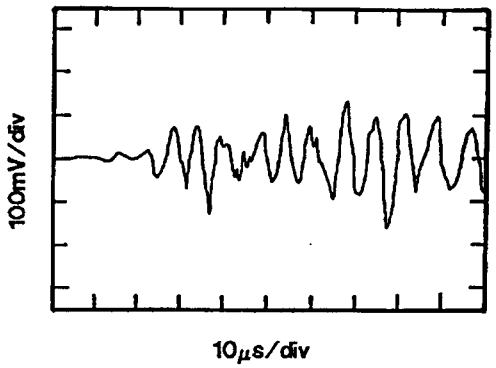
試料は、焦点距離ｆ＝２０００ｍｍのレンズの焦点から２００ｍｍ手前の位置に配置した。分解能２５μｍのリニアイメージセンサを用いて測定した照射光強度分布をＦｉｇ．７−３（ピコ秒レーザー）およびＦｉｇ．７−４（ナノ秒レーザー）に示す。２０ｎｓレーザーは狭帯域化されているので、回折による多くの干渉パターンが観測された。

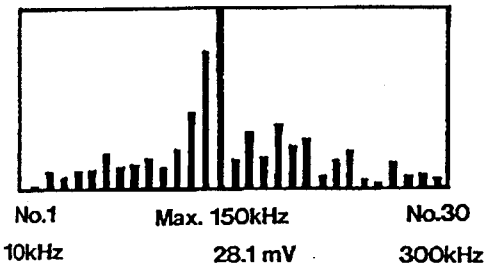
干渉の程度はレーザーにより異なり、他の測定例においても一様照射は保証され

ていない。損傷は干渉による光強度分布の最大値で生じることを考慮し、本実験では照射フルーエンスは強度分布の最大値で定義した。

[2] 音響検出解析装置

音響信号の検出にはＰＺＴ（チタン酸ジルコン酸鉛）ピエゾ素子を用いた。ＰＺＴは反強誘電体であるＰｂＺｒＯ3と強誘電体であるＰｂＴｉＯ3の固溶体で、電気機械結合定数が０．３（１ｋＨｚ）と極めて大きいのが特徴である。通常は強いピエゾ共振を示すが、波形解析用として共振を弱めたものもある。本測定では幾つかのＰＺＴの中から共振の強いものを選択し、共振を積極的に用いて感度向上を図った。実際に用いたピエゾ素子（NF AE-901S）は１５０ｋＨｚ付近に共振を持ち、共振点付近の感度の増加量は４０ｄＢに達する。





Ｆｉｇ．７－５　光音響信号とその周波数スペクトル。
スペクトル形状は、ＰＺＴの共振特性を反映している。

ＰＺＴ出力を利得４０ｄＢの高入力インピーダンス増幅器によって増幅した後、ストレージスロープ（IWATU DS-6121）によって観測した。得られた音響波形をマイクロコンピューターを用いてＦＦＴ解析し、ＰＺＴの共振周波数成分を抽出した。ＦＦＴ解析によって、レーザーの発するパルス性電気ノイズや可聴周波数雑音、プリアンプの熱雑音を著しく軽減できる。観測されたＰＺＴ出力とそのＦＦＴ出力はＦｉｇ．７－５のようであって、その周波数応答はＰＺＴの共振を反映している。

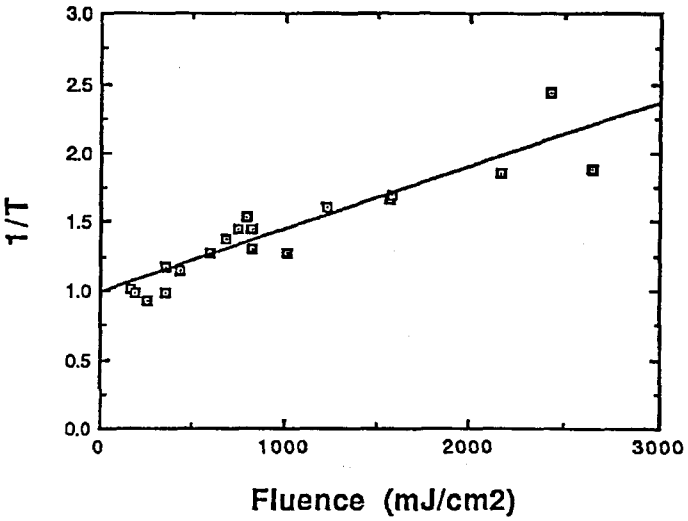
誘電体多層膜鏡では、ミラー表面で発生した音波は基盤内部に閉じこめられ、基

板の裏面と表面の間で反射を繰り返す音響モードを形成する。このため、試料表面にＰＺＴを取り付けると高感度検出できる。さらに、基板内の散乱光がＰＺＴ表面で吸収されて寄生信号を発しないよう、ＰＺＴ素子を試料の全反射膜側に固定した。

７．２－５　非線形吸収および損傷しきい値

初めに、入射光強度に対する石英窓材料の吸収変化を透過率法、および、光音響法を用いて測定し、測定感度を比較した。

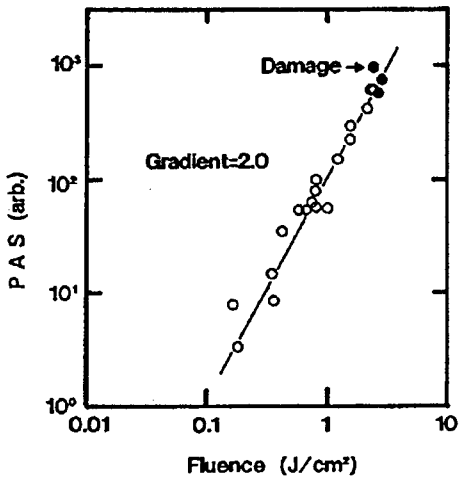
厚さ５．１ｍｍの石英窓材（ standard ）に対して、１．７ｐｓのパルスを照射した場合の透過率の変化をＦｉｇ．７－６に示す。横軸は入力フルーエンス、縦軸は透過率の逆数である。入力フルーエンスと共に透過率は低下し、２．６Ｊ／ｃｍ^{2}で損傷に至った。入力フルーエンスが２Ｊ／ｃｍ^{2}以上では、試料の厚さがわずか５ｍｍであるにもかかわらず透過エネルギーは１／２以下である。測定値を（７－４）式を用いて最小自乗解析した結果を直線で示す。２光子吸収係数β＝１．５×１０$^{-12}$ｃｍ／Ｗを得た。この値はこれまでの幾つかの報告[18]に比べ、１桁から２桁小さい。透過率法では、多光子吸収測定に必要な光強度が自己集束のしきい値を一桁上回っており、入射ビームに細かな強度分布があると容易に自己集束を生じる。自己集束が生ずると見かけのβは大きく現れるので、



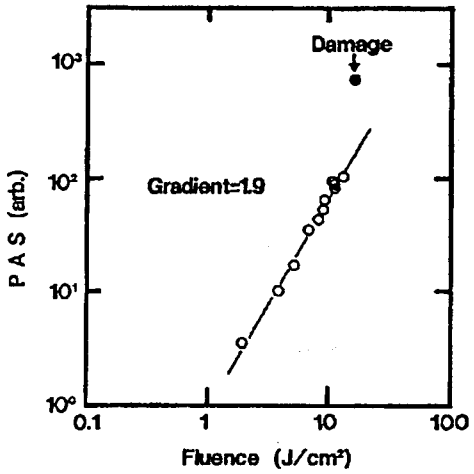
Ｆｉｇ．７－６　光強度－（１／Ｔ）特性。
レーザーパルス幅は１．７ｐｓ，
実線は最小自乗法による解析結果
（β＝１．５×１０^{12}ｃｍ／Ｗ）を示す。

これが他の測定における誤差の原因と推測される。本測定では、Ｆｉｇ．７－７に示すように測定領域全体で光音響信号は入力フルーエンスに対して傾き２の直線上に乗り、自己集束は観測されていない。

厚さ２．２ｍｍの試料の場合、パルス幅２０ｎｓでは透過率法によって多光子吸収は検出できない。しかし、光音響法を用いるとＦｉｇ．７－８に示すように２次の直線を示す。１００MW／ｃｍ^2（２Ｊ／ｃｍ^2）以下の低光強度領域でも２光子吸収が観測され、ナノ秒レーザーにおいても多光子吸収を無視出来ないことが明らかになった。



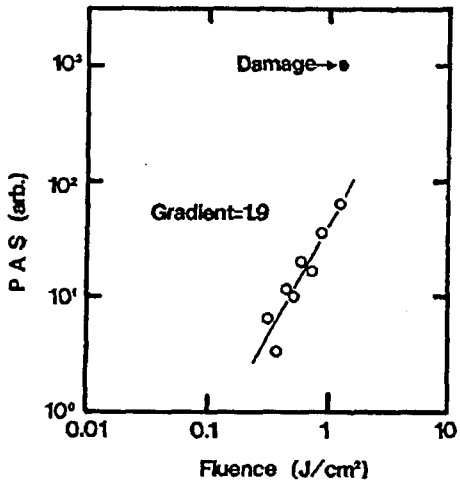
Ｆｉｇ．７－７
厚さ５．１ｍｍ石英窓中の光音響信号。
（パルス幅１．７ｐｓ）



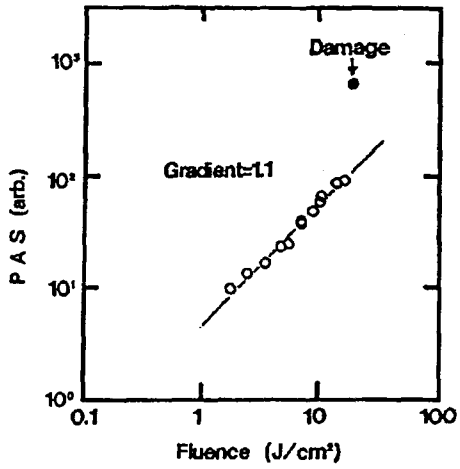
Ｆｉｇ．７－８
厚さ２．２ｍｍ石英窓中の光音響信号
（パルス幅２０ｎｓ）

代表的な誘電体多層膜中の光音響信号をＦｉｇ．７－９からＦｉｇ．７－１２に示す。

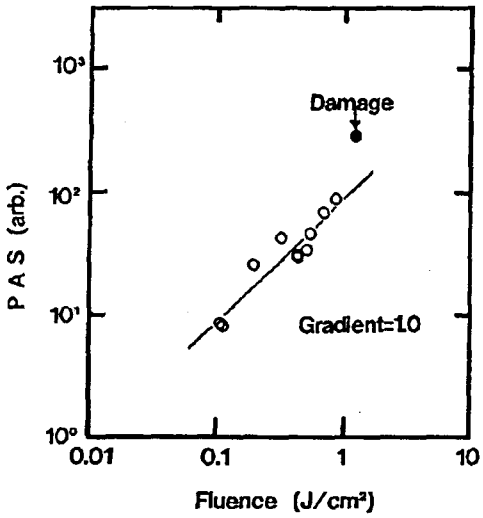
Ｆｉｇ．７－９	Al_2O_3／MgF_2	（１．７ｐｓ）
Ｆｉｇ．７－１０	〃	（２０ｎｓ）
Ｆｉｇ．７－１１	GdF_3／Na_3AlF_6	（１．７ｐｓ）
Ｆｉｇ．７－１２	〃	（２０ｎｓ）



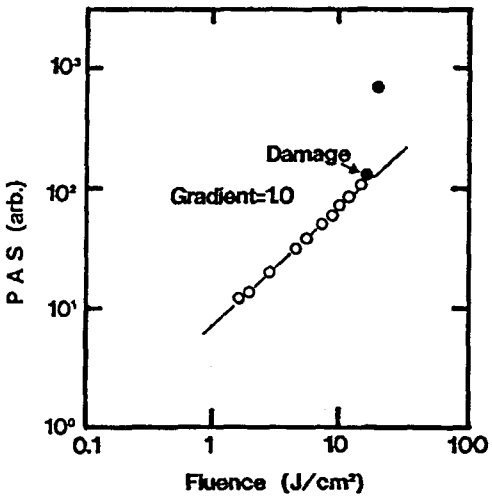
Ｆｉｇ．７－９
Ａｌ₂Ｏ₃／ＭｇＦ₂の吸収と損傷しきい値。（パルス幅１．７ｐｓ）



Ｆｉｇ．７－１０
Ａｌ₂Ｏ₃／ＭｇＦ₂の吸収と損傷しきい値。（パルス幅２０ｎｓ）



Ｆｉｇ．７－１１
ＧｄＦ₃／Ｎａ₃Ａｌ Ｆ₆の吸収と損傷しきい値。（パルス幅１．７ｐｓ）



Ｆｉｇ．７－１２
ＧｄＦ₃／Ｎａ₃Ａｌ Ｆ₆の吸収と損傷しきい値。（パルス幅２０ｎｓ）

損傷が生じると光音響信号は不連続的に大きく変化するので、損傷の検出は極めて容易であった。この時、Ｈｅ－Ｎｅレーザーの散乱光も同時に観測され、光音響

法による損傷検出の感度はレーザー散乱法と同程度であることが分かった。

Al_2O_3にピコ秒レーザーを照射した場合には、吸収量は傾き２を示した。バルク材料に比べて線形吸収が大きい誘電体多層膜中でも、線形吸収を上回る２光子吸収が存在することが初めて測定された。HfO_2ミラーも傾き１．２を示し、２光子吸収の関与を裏付けている。

損傷しきい値と、その点における吸収次数をＴａｂｌｅ ７－２にまとめて示す。合成石英窓材は、全て２光子吸収により破壊された。石英窓材の損傷は、レーザー光の電界が最大になる基板の裏面に発生した。石英窓材の損傷しきい値は、表面粗さに強く依存している。

Ｔａｂｌｅ ７－２ 損傷しきい値。
２光子吸収による損傷を網掛けで示す。

Sample		Damage Threshold [J/cm^2] 20ns	1.7ps
Fluoride Full Reflector	LaF_3/Na_3AlF_6	21 (1.1)	1.1 (650)
	GdF_3/Na_3AlF_6	18 (0.9)	1.1 (650)
Oxide Full Reflector	Al_2O_3/MgF_2	16 (0.8)	1.0 (590)
	HfO_2/SiO_2	4.0 (0.2)	0.42 (250)
Bare SiO_2	(High Grade)	18 (0.9)	2.7 (1600)
	(Standard)	11 (0.55)	2.5 (1500)

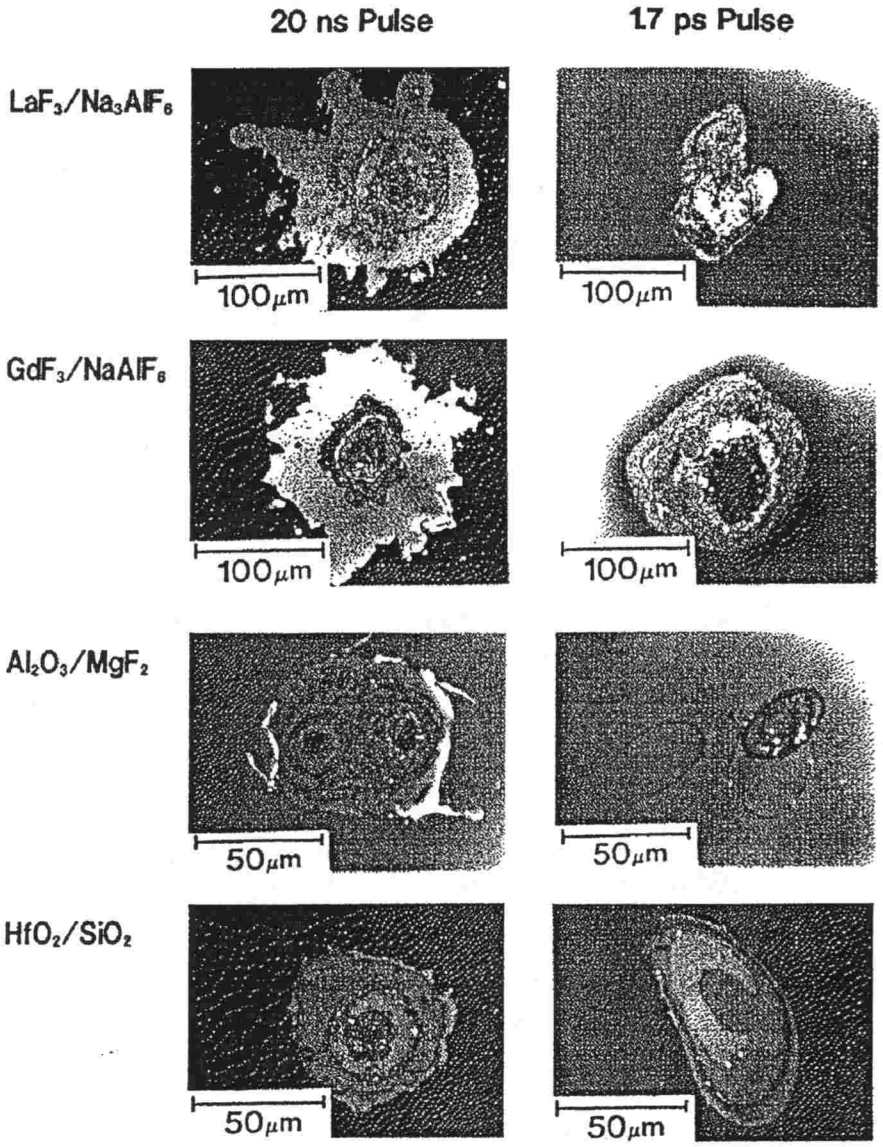
Wide ↑ Band Gap ↓ Narrow

2 photon damage

All bases are fused silica
Values in parentheses () are in GW/cm^2

ピコ秒照射において、酸化物膜は２光子吸収を示した。しかし、フッ化物膜中の多光子吸収は観測されない。フッ化物薄膜では、励起子等の線形吸収が３光子吸収よりも強く現れたものと推測できる。

多層膜鏡の損傷しきい値は材料のバンドギャップに強く依存している。驚くべきことに、ナノ秒照射では、多光子吸収が観測されないにもかかわらず、ピコ秒照射よりも損傷しきい値のバンドギャップ依存性が強い。中でも、LaF_3／Na_3AlF_6は、HfO_2／SiO_2に比べ5倍以上高い損傷しきい値を示した。



Ｆｉｇ．７－１３　損傷の顕微鏡写真

損傷の光学顕微鏡写真をＦｉｇ．７－１３に示す。ナノ秒照射では、深層まで損傷が及び、損傷の周囲に溶融の痕跡がある。特に、酸化物ミラーは溶融の程度が著しい。

一方、ピコ秒照射では、オーバーコート及び最上面のＨＬ層が吹き飛んでいる。また、損傷周囲に溶解は認められない。これらの理由として、誘電体多層膜中の光強度の最大値は第１Ｈ／Ｌ膜の境界面にあること、およびピコ秒照射では熱拡散が無視できることが考えられる。以下、熱拡散を定量的に考察する。

レーザーパルス幅をτ_pとすると、その時間内の熱拡散長X_dは、

$$X_d = 2(\alpha \tau_p)^{1/2}, \quad \alpha = \frac{\kappa}{\rho c} \qquad (7-7)$$

で与えられる。ここで、αは熱拡散定数、κは熱伝導率、ρは質量密度、ｃは比熱である。合成石英の場合、αは8.7×10^{-3}である。パルス幅が２０ｎｓの時には、X_d（２０ｎｓ）＝2.6×10^{-7}mである。ビーム径方向への拡散は無視できるが、深さ方向には４層程度の広がりを生ずる。熱拡散の結果、膜内部の温度分布は光強度分布よりも緩やかになり、Ｈ／Ｌ境界部の局部的な温度上昇は現れない。一方、２ｐｓ照射の場合、熱拡散長X_d（２ｐｓ）は2.6×10^{-9}mであって熱拡散を全く無視することが出来る。この場合、温度上昇は光強度分布に一致し、Ｈ／Ｌ境界部で著しい。吸収過程が２光子吸収である場合、吸収は光強度分布の２乗形となって温度上昇はさらに局部的である。これらの考察の結果は、損傷の様子を良く説明する。短パルス損傷時では、溶融の痕跡が認められないことを考え合わせると、局部的な温度上昇による内部応力によって膜が機械的に剥離したものと推測出来る。

７．２－６　まとめ

光学薄膜中の多光子吸収を光音響法を用いて高感度に測定し、吸収・損傷機構について考察した。

[1] 誘電体多層膜中の多光子吸収を初めて観測した。２ｐｓレーザー照射時の酸化物系多層膜の損傷機構は２光子吸収によることを明かにした。一方、フッ化物系多層膜はピコ秒照射においても線形吸収が損傷要因であることが明らかになった。

[2] ２０ｎｓ照射では、何れの膜も線形吸収領域で損傷を生じた。それにもかかわらず、フッ化物系多層膜は酸化物系に比べ約５倍高い損傷しきい値を示す。次節で述べる電子雪崩の関与を示している。

[3] 合成石英の２光子吸収係数β＝１．５×１０$^{-12}$ｃｍ／Ｗを得た。これまでの報告に比べ１桁から２桁、多光子吸収による透過率の制限は緩やかであることが明かになった。しかし、１００ＭＷ／ｃｍ^{2}の比較的低い光強度においても、２光子吸収量は線形吸収を上回っている。この結果から、ナノ秒領域の長パルス照射においても合成石英に劣化をもたらす要因は多光子吸収であることが明らかになった。

７．３　光電流法を用いた電子雪崩の観測

光音響法による吸収測定結果から、短パルスレーザー損傷における多光子吸収の寄与が明らかになった。一方、ナノ秒照射時においては、光強度が低く、多光子吸収が観測されないにもかかわらず、損傷しきい値はより強いバンドギャップ依存性を示す。この結果は、他の損傷機構の関与を裏付けている。

この時間領域の損傷原因として、電子雪崩[19)20)21)]が考えられ、これまでにも多くの理論的説明がなされた。しかし、電子雪崩を実験的に直接観測した例はなく、これら理論は定性的な説明に留まっている。

本節では光電流法を用いて吸収を時間分解計測し、電子雪崩の動的な振る舞いを考察する。

７．３－１　アルカリ結晶中の光電流

ＣｄＳ等の半導体の光導電効果は良く知られているが、バンドギャップの大きなハロゲン化アルカリ結晶も紫外光の照射により励起され、光電流を発生する。励起の機構としては、多光子吸収によるもの、励起子吸収によるものが考えられる。

ハロゲン化アルカリ結晶では、電子の移動度が半導体の１／１０００程度に小さい。故に、生成した電子・正孔対はクーロン力のおよぶ範囲で激しく散乱され、自由キャリアになる前に再結合するものもある。結果として光電流は小さく、また、量子効率も低い。[22)]

アルカリ結晶中で光吸収によって生じた電子・正孔対の内、正孔は直ちに捕獲されて自縄自縛励起子となり電荷の担いてとならない。一方、電子の移動距離X_eは

$$X_e = \mu_e E \tau_e \qquad (7-8)$$

で与えられる。今、アルカリ結晶中の典型的な電子の移動度$\mu_e = 3$（cm^2/Vs）を用い、印加電界が$E = 20\,kV/cm$の場合を考えると、キャリア寿命$\tau_e = 1\,ns$の間に電子が走行する距離Ｌは僅か６０μmである。電極間隔が数ｍｍの実験条件では、電子は電極に到達できない。観測される電流は１次光

電流（変位電流）である。このため、光電流は電極材料の仕事関数の影響を受け難く、キャリアの生成効率に比例する。

7．3－2　電子雪崩損傷の理論的解析

ここでは、電子雪崩損傷を解析的に考察し、レーザーパルス幅と損傷しきい値の関係を示す。

初めに、衝突電離を行うために十分なレーザー電界が存在し、再結合による電子の損失が無視できる場合を考える。この場合、衝突電離による電子の増倍率の上限は入射レーザー光のエネルギーにより制限される。レーザー電界E_Lによって、電子１つが受け取るエネルギーｕは電子の電界方向への移動量をＬとして

$$u = eE_L L \qquad (7-9)$$

である。距離Ｌ走行するに要する時間をｔとすると、Ｌはμeを電子の移動度として

$$L = \mu_e E_L t \qquad (7-10)$$

$$\therefore \quad u = \mu_e E_L^2 t \qquad (7-11)$$

となる。単位時間あたり電子が受け取るエネルギーｕは電界の２乗に比例する。[23]単位時間あたりの増倍率をγと定義すれば、γはレーザー光から電子が受け取るエネルギーをイオン化エネルギーで除したものであるから、γはE_Lの２乗、すなわちレーザー光強度I_Lに比例する。電子数ｎの時間変化ｄｎ／ｄｔはγを用いて

$$\frac{dn}{dt} = \gamma t \propto I_L t \qquad (7-12)$$

と書ける。レーザーパルス幅をτ_Lとすれば、電子増倍によってτ_L後に到達する電子数nは種電子数をn_0として

$$n = n_0 \exp(\gamma \tau_L) = n_0 \exp(A E_L^2 \tau_L) \qquad (7-13)$$

である。ここで、Aは比例定数である。

損傷を生ずる臨界電子密度をn_cとすると、その時の電界強度E_bは

$$E_b = \left[\frac{\log_e\left(\frac{n_c}{n_0}\right)}{A \tau_L} \right]^{\frac{1}{2}} \qquad (7-14)$$

$$\propto \tau_L^{-1/2}$$

である。損傷しきい値におけるレーザー電界はパルス幅の1／2乗に反比例する。この結果はピコ秒ガラスレーザーを用いた固体材料の損傷しきい値のパルス幅依存性と一致する。[24)]

次に、電子の再結合時間がレーザーパルス幅よりも短い場合を考える。このとき、電子の実効的な増倍率は、再結合速度の関数となる。この時の電子数の変化dn_e/dtはつぎの速度方程式によって記述できる。今、電子の寿命をτ_eとし、m光子吸収によって種電子が生成されているならば、

$$\frac{dn_e}{dt} = \sum_{q=1}^{m} \sigma_q \left(\frac{I_L}{h\nu}\right)^q N + \left[\gamma(I_L) - \frac{1}{\tau_e}\right] n_e \qquad (7-15)$$

である。ここで、Nは媒質の密度、qは多光子吸収の次数、σ_qはq光子吸収断面

積である。（７－１５）式の右辺第１項は種電子の発生を表し、第２項は衝突電離と再結合による電子数の変化を表している。再結合に打ち勝って電子雪崩が発生するためには、

$$\gamma - \frac{1}{\tau_e} > 0 \qquad (7-16)$$

の必要がある。

損傷に達するまでに必要なレーザーフルーエンスF_Lのパルス幅依存性は（７－１３）式のγを$\gamma - 1/\tau_e$と置き換えて、

$$F_L = \frac{1}{k}\left(\log.\frac{n_c}{n_0} + \frac{\tau_L}{\tau_e}\right) \qquad (7-17)$$

と求められる。ここで、kは定数である。

以上の考察をまとめると、F_Lは$\tau_L << \tau_e$では一定値であり、$\tau_L >> \tau_e$ではレーザーパルス幅に比例する。レーザー電界が十分かつ、パルス幅がキャリア寿命よりも長い場合には、電子雪崩のしきい値はキャリア寿命の影響を強く受ける。

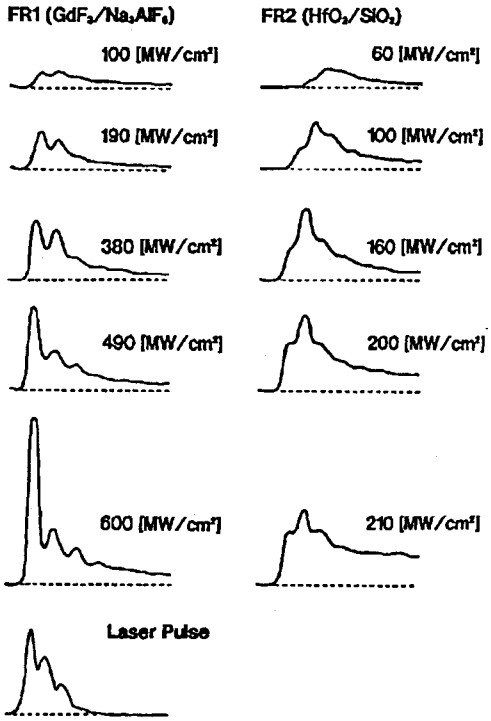
７．３－３　キャリア密度の時間分解計測

誘電体多層膜全反射鏡にＫｒＦレーザー光を照射し、光電流を観測した。光学系の測定配置はＦｉｇ．７－２と同様である。電極には銅を用いた。電極間隔２ｍｍ、印加電圧は２ｋＶである。空気中のイオン電流を避ける為に、試料は電子付着性の極めて高いSF_6ガス中に配置した。

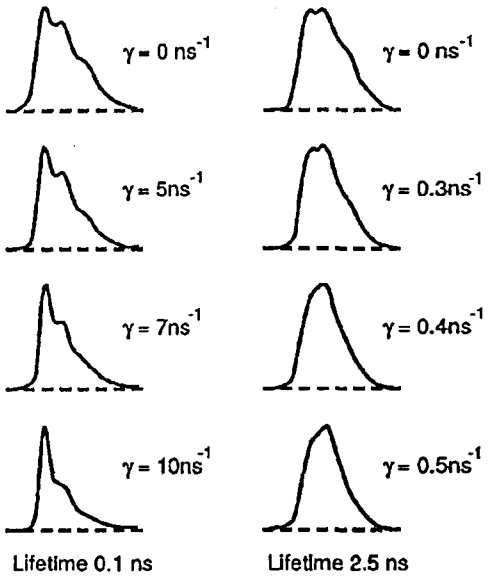
２０ｎｓのＫｒＦレーザーを照射した場合の光電流の時間変化をＦｉｇ．７－１４に示す。左がGdF_3/Na_3AlF_6ミラー、右がHfO_2/SiO_2ミラーである。酸化物、フッ化物共に入力光強度の増加に対して光電流の

増加は非線形である。しかし、光電流の時間積分値を求めたところ、その非線形性は僅かであった。この結果より、非線形な電流増加はレーザー光のピーク付近の限られた時間で起こることが分かった。

時間波形に注目すると２つの試料の間に大きな違いが見られる。ＧｄＦ３／Ｎａ３Ａｌ Ｆ６ではレーザー光の第１ピークに相当する時刻に最大値を持ち、入力光強度を増加するにつれて先鋭化する。一方、ＨｆＯ２／ＳｉＯ２ミラーでは、時間積分効果が見られ、レーザー光の第２ピーク位置で最大値を示す。図中、最下位のトレース（ＧｄＦ３／Ｎａ３Ａｌ Ｆ６の場合６００MW／ｃｍ^2，ＨｆＯ２／ＳｉＯ２では２１０MW／ｃｍ^2）が損傷しきい値における電流波形である。図から分かるように、損傷が生ずると両者とも長い尾を引く。しかし、損傷を生じても光電流の変化は小さく、光電流を観測して損傷の発生を検出することは難しい。



Ｆｉｇ．７－１４　光電流の時間変化。
左下に照射レーザー波形を示す。



Ｆｉｇ．７－１５　キャリア密度の計算結果

計算機シミュレーションを行ってミラー内部の電子密度の時間変化を解析した。自由キャリア密度の時間変化ｄｎｅ／ｄｔを（７－１５）式により求めた。ここで、媒質の密度をＮとしてｎｅ＜＜Ｎを仮定した。電子増倍率γは（７－１２）式より照射光強度に比例し、比例定数をｇとして$\gamma = g I_L$（ｇは利得定数）と記述出来るものとした。種電子の供給機構は光音響法の測定結果より線形吸収（ｍ＝１）とした。多層膜の吸収断面積σ_1は未知であるので、（７－１５）式の両辺を右辺第１項（吸収光子数）で規格化し、相対的な電流波形を求めた。

解析は、γおよび、τ_eをパラメータとして行った。初めに、電子増倍が無視できる低照射光強度で測定した電流波形と、$\gamma = 0$とおいた計算波形の比較によりキャリア寿命τ_eを決定した。このとき測定系の応答時間（帯域１００ＭＨｚ）を考慮した。次に高照射強度における非線形な波形の変化からγ（I_L）を求めた。

計算結果をＦｉｇ．７－１５に示す。各電流波形の大きさはその最大値で規格化してある。電子の実効寿命はHfO_2／SiO_2ミラー場合で２．５ｎｓ、GdF_3／Na_3AlF_6では検出限界（０．５ｎｓ）以下であった。損傷しきい光強度（波形中のピーク値）における電子増倍率γは、HfO_2／SiO_2の場合、$\gamma = 4 \times 10^{-10} s^{-1}$と見積もられる。$\tau_e$を０．１ｎｓと仮定すると、$GdF_3$／$Na_3AlF_6$の$\gamma$は$7 \sim 10 \times 10^{9} s^{-1}$であって損傷に要する電子増倍利得が$HfO_2$／$SiO_2$に比べ約１桁高い。損傷時波形に見られる時定数の長い電流は（７－１５）式から説明出来ず、損傷時の表面プラズマによるものと推測している。

損傷しきい値と電子増倍利得の関係をＴａｂｌｅ ７－３に示す。損傷しきい値は、再結合を含む実効電子増倍利得（$\gamma - 1/\tau_e$）が零を越える光強度と一致した。この結果から、電子雪崩損傷のしきい値は電子増倍利得のみでなく、キャリア寿命にも大きく影響されることが明かである。キャリア寿命の比較的長いHfO_2／SiO_2は、低い電子増倍利得でも電子雪崩を生ずるのに対し、GdF_3／Na_3AlF_6では、発生したキャリアが高速に再結合して消失するので、高い光強度まで電子雪崩を発生しない。

Table 7－3 損傷しきい値における電子増倍利得と実効寿命の関係

Multilayer	γ	τ_e	$\gamma-1/\tau_e$
GdF_3/Na_3AlF_6	10	0.1	0
HfO_2/SiO_2	0.4	2.5	0

電子雪崩によって発生する電子の数は$\gamma\tau_L$、すなわち、レーザーフルーエンスに比例する。ピコ秒照射では、損傷しきい値におけるレーザーフルーエンスが低いので、電子雪崩を発生しない。同時に、電子の再結合の影響も小さくなるのでτ_eの影響が無視できると考えるとTable 7－2の実験結果を説明できる。

高耐力ミラー製造の観点から見ると、キャリア寿命を短くする事により、ナノ秒パルス照射時の耐力を増加できる可能性がある。しかし、キャリアの再結合中心は同時に吸収体となる場合もある。このため、吸収およびキャリア寿命の両面から光学材料を評価する必要がある。

7．3－4 まとめ

光学薄膜中の吸収を光電流法により時間分解計測した。得られた光電流波形を電子の実効寿命を考慮した電子雪崩モデルを用いて解析した。

[1] 光電流を用いて非線形吸収の観測が可能であることを示した。しかし、損傷しきい値の前後における光電流の変化は連続的である。このため、損傷の検出感度の点では光音響法が優れる。

[2] 電子雪崩モデルを用いて、光電流の動的振る舞いを解析した。損傷しきい値は、電子雪崩の発生しきい値に一致することを明らかにした。この結果より、ナノ秒照射おける損傷機構は電子雪崩であることを定量的に示した。

[3] 電子雪崩のしきい値は、電子増倍利得と電子の実効寿命の関数である。実効寿

命の短い材料は高い損傷しきい値を示すことを明らかにした。

7．4　むすび

紫外光学材料内部の吸収を光音響法を用いて観測し、損傷にいたるまでの吸収量の変化を測定した。さらに、光電流法を用いて吸収の時間分解計測を行い、電子雪崩モデルを用いて損傷機構を考察した。

[1] 誘電体多層膜中の多光子吸収を初めて観測した。２ｐｓレーザー照射時の酸化物系光学薄膜の損傷要因が２光子吸収であることを明らかにした。一方、フッ化物系光学薄膜ではピコ秒照射においても線形吸収が損傷原因である。蒸着条件等の最適化による損傷しきい値向上が予想される。

[2] 合成石英の２光子吸収係数$\beta = 1.5 \times 10^{-12}$ ｃｍ／Ｗを得た。この値はこれまでの報告に比べ１桁から２桁小さい。本測定により、多光子吸収よる透過率の制限は緩やかであることを明かになった。しかし、合成石英は１００MW／ｃｍ^{2}の比較的低い光強度においても、線形吸収を上回る２光子吸収を示す。この結果から、ナノ秒照射でも合成石英に劣化をもたらす原因は多光子吸収であることが分かった。

[3] 電子雪崩モデルを用いて光電流波形を解析し、損傷しきい値における電子増倍利得と電子の実効寿命の関係を考察した。損傷しきい値は電子雪崩のしきい値に一致することを明らかにした。さらに、電子雪崩のしきい値は電子の実効寿命に依存することを明らかにした。これらの考察より、電子の実効寿命を短くすることにより光学薄膜を高耐力化出来る可能性があることを示した。

参考文献

[1] I.M.Catalano, A.Cingolani, and A.Minafra: Phys.Rev.B,vol.5,pp.1629−1632(1972).

[2] A.J.Taylor, R.B.Gibson, and J.P.Roberts: Opt.Lett.,vol.13,pp.814−816(1988).

[3] P.Liu, R.Yen, and N.Bloembergen: Appl.Opt.,Vol.18,pp.1015(1979).

[4] G.Baldini and B.Bosacchi: Phys.Rev.vol.166,pp.863−870(1968).

[5] R.T.williams, J.N.Bradford, and W.L.Faust: Phys.Rev.B,vol.18,pp.7038−7057(1978).

[6] W.L.Smith, J.H.Bechtel, and N.Bloembergen:Phys.Rev.B,vol.12,pp.706−714(1975).

[7] A.Rosencwaig:Rev.Sci.Instrum.,Vol.48,pp.1133−1137(1977).

[8] A.Rosencwaig:J.Appl.Phys.,Vol.49,pp.2905−2910 (1978).

[9] G.Busse: Appl.Phys.Lett.,Vol.36,pp.815−816(1980).

[10] Andrew c.Tam: Rev, Mod. Phys.,Vol.58,pp.381−431(1986).

[11] C.K.N.Patel, A.C.tam:Rev, Mod. Phys.,Vol.53,pp.517−550(1981).

[12] A.Rosencwaig, J.B.Wills: Appl.Phys.Lett.,Vol.36,pp.667−669(1980).

[13] J.A.M.Jeen, J.M.Green:J.Phys E: Sci.Instrun,.Vol.17,pp.191−195(1984).

[14] S.Petzoldt, A.P.Eolg, M.Reichlihg, J,Reif, and E.Matthias:
Appl. Phys. Lett.,Vol.53,No.21,pp.2055−2007 (1988).

[15] 植田憲一、萩原真一、北谷文人、宅間　宏：
レーザー研究 ,vol.15,pp.22−31(1987).

[16] A.Rosencwaing and A.Gersho: J. Appl.Phys.,vol.47,pp.64−69(1976).

[17] T.Izawa, N.Yamamura, R.Uchimura, I.Hashimoto, and T.Yakuoh:
Proc. of SPIE,vol.1441,pp.339−344(1990).

[18] P.Simon and H.Gerhardt: Opt.Lett.vol.21,pp.1207−1209(1989).

[19] N.Bloembergen: IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−10,pp.375−386(1974).

[20] A.S.Epifanov: Sov.Phys.JETP,vol.40,pp.897−902(1975).

[21] B.G.Gorshkov, A.S.Epifanov, and A.A.Manenkov:
Sov.Phys.JETP,vol.49,pp.309−315(1979).

[22] "Laser Techniques for Invesitigation of Defects in Semiconductors and Dielectrics"
ed. by A.A.Manenkov, Nova Science Publishers New York,vol.4,(1988).

[23] A.S.Epiffanov: IEEE J.Quantum Electron.,vol.QE−17,pp.2018−2022(1981).

[24] M.J.Soileau, W.E.Williams, E.W.V.Stryland, T.F.Boggess, A.L.Smirl:
Opt.Eng.,vol.22,pp.424−430(1983).

第８章　結論

８．１　研究内容と成果

本研究は超短パルス紫外レーザーの高出力化に必要な技術開発を目的として行った。

本研究の内容およびその成果は以下のように総括される。

第２章では、ＫｒＦエキシマや紫外レーザーの性質が超短パルス光増幅に際して与える問題点を詳述し、本研究に至った動機、および、本研究の位置づけを示した。レーザー媒質の吸収よりもＡＳＥの発生がシステムの効率を制限することを示し、増幅によるコントラスト比の劣化は不可避であることを明かにした。ＧＶＤ、ＳＰＭは紫外において顕著であり、サブピコ秒パルスの増幅にはパルス圧縮システムの併用が必要であることを示した。さらに、レーザーの引き出し効率の改善のためには、励起時間に等しい時間遅延を備えた外部パルス圧縮法が必要であることを示した。加えて、パルス幅測定、非線形吸収の評価手段が必要であることを指摘した。

第３章では、紫外可飽和色素（アクリジン）の飽和特性、溶媒効果、寿命を測定し、その有効性を明かにした。アクリジンの飽和フルーエンス、残留吸収は紫外可飽和吸収体の中で最も低く、超短パルス光によっても容易に飽和可能であることを示した。あわせて、ＡＳＥに対して零利得となる短パルス増幅システムを構築し、ＡＳＥの成長を完全に抑制できることを実験的に示した。

第４章では、実効飽和フルーエンスの異なる２つの可飽和吸収体を用いることによって、高速の光変調を可能とする原理を提案した。色素レーザー、ＫｒＦレーザーに適用し、フーリエ限界に近いフェムト秒パルスを発生させて原理の有効性を示した。８４％のレーザーエネルギー利用率と光強度比6×10^{7}に及ぶＡＳＥ抑制を同時に達成し、高い引き出し効率とＡＳＥ抑制を両立出来ることを示した。

第５章では、ラマン利得帯域の前方－後方非対称性を用いた後方ラマンパルス圧縮法を提案した。解析解を用いて圧縮限界を考察し、２次ストークス光しきい利得に対するスケーリング則を導出した。シミュレーションコードを用いて本パルス圧縮法の適用範囲を明らかにし、解析解の有効性を示した。メタンガス中で２０ｎｓのＫｒＦレーザー光を３０ｐｓのストークス光の変換し、光強度圧縮率１５０倍を達成すると共に、２次ストークス光しきい利得に対する圧縮率のスケーリング則を実証した。

第６章では、光音響法を初めてシングルショット自己相関計に応用した。空間分解能６０μｍを持つ光音響検出器を開発し、これを用いて１ＧＷ／ｃｍ^{2}以下の低い光強度で多光子吸収が測定出来ることを示した。ＫｒＦレーザーパルスを測定し、多光子励起蛍光法に比較して約２桁高い測定感度を持つことを示した。

第７章では、光学薄膜内部の非線形吸収を測定し、レーザー損傷機構を考察した。光音響法を用いて、光学薄膜内部の多光子吸収を初めて観測し、ピコ秒照射時の酸化物薄膜の損傷原因が多光子吸収であることを実験的に明らかにした。一方、フッ化物薄膜では線形吸収が損傷要因であり、蒸着条件の改善によりさらに高耐力化が図れることを明らかにした。

さらに、光電流法を用いてナノ秒照射時における吸収の時間発展を測定し、電子雪崩損傷モデルを用いて光電流波形を解析した。電子雪崩のしきい値とレーザー損傷しきい値が一致することを示し、損傷しきい値がキャリア寿命に依存することを明らかにした。

８．２　超高出力ＫｒＦレーザーへの応用

以上の研究成果を大型レーザーシステムに応用することにより高出力化が期待される。

大体積のレーザー増幅器では、強いＡＳＥが発生する。加えて、光学窓も厚くなり多光子吸収が顕著に現れる。このような大型レーザーシステムでは、可飽和色素

を用いたＡＳＥ制御法、パルス圧縮法は大きな効果を示す。実際に口径２８ｃｍの電子ビーム励起ＫｒＦシステムにアクリジン色素を用い、ＡＳＥを完全に抑制したパルス幅５００ｆｓ、出力２．５ＴＷの出力を得た。レーザー光強度10^{15} W／cm^2における照射実験では、僅か４％のＡＳＥによってターゲットからの反射光強度が１桁減少することが確認された。この結果より、可飽和色素はターゲット実験に対して必要不可欠であることが示された。

一方、ラマンパルス圧縮法を用いると、小型の放電型レーザーシステムから高エネルギーの短パルス光を発生できるようになる。本研究に関連して、光共振器内部に蓄積した光エネルギーを過渡後方ラマン圧縮する研究を続行中であり、さらに高い圧縮率が期待される。

第７章で述べたフッ化物系誘電体多層膜鏡の損傷しきい値は、１．７ｐｓパルスに対して６５０GW／cm^2に達した。ＫｒＦレーザー増幅器の出力限界はパルス幅１００ｆｓ、フルーエンス２０ｍＪ／cm^2、光強度に換算して２００GW／cm^2である。故に、現段階において、光学素子の損傷は出力制限要因ではなくなった。本研究によってフッ化物ミラーの損傷原因はピコ秒照射においても線形吸収であることが明らかになった。蒸着条件の最適化によって線形吸収を減少させることにより、１ＴＷ／cm^2以上の耐力が実現できるものと期待される。

謝　辞

本研究の遂行に際し、終始懇篤なるご指導、ご鞭撻を賜りました電気通信大学レーザー極限技術研究センター長 宅間　宏 教授に深厚なる謝意を表します。

本研究の機会を与え、公私にわたる親身となった直接のご教示、情熱的なご指導を戴いた 植田憲一 教授に心からの謝意を表します。

大阪大学博士課程在学中、本論文の執筆に際し、ご指導、ご助言を戴いた山中龍彦 大阪大学教授に深く感謝致します。

また、研究に際して多くの助言や熱心な討論を戴いた白田耕蔵 教授、平　洋一 助教授（現，日本ＩＢＭ）、多くの激励を戴いた清水富士夫 東京大学教授、清水和子 講師に謝意を表します。

さらに、研究に際して協力を戴いた米田仁紀 助手、佐々木明 助手に感謝致します。

情熱的に研究を共にし、昼夜を問わず、全力を上げ協力戴いた、大家智憲氏、倉嶋利雄氏、 浦壁俊光氏、 倉西英明氏、 長谷川真氏、 溝口芳三氏、 河角孝行氏、木村一彦氏を初めとする研究グループの諸氏に深く感謝致します。

業績目録

Ⅰ．主要論文

1)H.Nishioka, H.Kuranishi, K.Ueda and H.Takuma:
"UV Saturable Absorber for Short Pulse KrF Laser Systems";
Opt.Lett. Vol.14.692−694(1989).

2) 西岡　一、倉西英明、植田憲一、宅間　宏：
「紫外用可飽和色素アクリジンと短パルスＫｒＦレーザーへの応用」；
レーザー研究、 Vol.17,pp.652−661,(1989).

3) 西岡　一、倉西英明、植田憲一、宅間　宏：
「２重可飽和色素とＫｒＦレーザー増幅器を用いたサブピコ秒パルス発生」；
レーザー研究、 Vol.14,pp.122−129(1991).

4)H.Nishioka, K.Kimura, K.Ueda, and H.Takuma:
"High Compression Ratio Backward Raman Conversion for High Brightness
Excimer Laser Systems"; IEEE J.Quantum Electron.Vol.29,No.7(1993).

5)H.Nishioka, M.Ishiguro, T.Kawasumi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Single Shot UV Autocorrelator That Uses Two Photon Induced
Photo−acousitc Signal in Water"; Opt.Lett.,Vol.18,pp.45−47(1993).

6)H.Nishioka, T.Kawasumi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Measurement of Multi−photon Absorption and Electron Avalanche in Optical Thin Films"
Laser and Particle Beams,Vol.11,pp.55−64(1993).

7) 西岡　一、河角孝行、植田憲一、宅間　宏：
「紫外光学薄膜の多光子吸収と電子雪崩の観測」；
レーザー研究、 Vol.20,pp.344−354,(1992).

8) 西岡　一、佐々木明、倉嶋利雄、植田憲一、宅間　宏、糟谷紘一：
「電子ビーム励起ＫｒＦレーザーの電子脱励起速度定数の測定」；
レーザー研究、 Vol.16,pp.571−581,(1988).

9) 西岡　一、久野裕彦、神永　武、植田憲一、宅間　宏：
「ＵＶファラデー回転素子の開発」；
レーザー研究、 Vol.12,pp.660−662,(1984).

10) 植田憲一、西岡　一、久野裕彦、神永　武、宅間　宏：
「ＵＶファラデー回転素子のＫｒＦレーザーへの応用」；
レーザー研究、 Vol.13,pp.805−831,(1985).

II. 国際会議プロシーディングス

1)H.Nishioka, H.Kuranishi, K.Ueda and H.Takuma:
"Generation of 400fs Pulse in KrF Laser Amplifier with Saturable Absorber";
Proc.LASERS'89,pp.110−115,(1990).

2)H.Nishioka, T.Kawasumi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Sub−ps KrF Laser and Its Application for Multi−Photon Absorption Measurements";
Proc.LASERS'90,pp.529−535,(1991).

3)H.Nishioka, H.Yoneda, K.Ueda, and H.Takuma:
"Toward The Super High Power KrF Lasers −
Generation of Ultra−short Pulse Using Saturable Absorber Acridine";
Proc.IAEA Technical committee meeting on drivers
for inertial confinement fusion,pp.363−366,(1991).

4)H.Nishioka, K.Kumura, K.Ueda, and H.Takuma:
"High Compression Ratio Backward Raman Conversion for High Brightness
Excimer Laser Systems" ; Proc.IAEA Technical committee meeting on drivers
for inertial confinement fusion,pp.327−330,(1991)

5)H.Nishioka, T.Kurashima, K.Ueda, and H.Takuma:
"Strongly saturated Gain measurements and Kinetics Study of KrF Lasers";
Short−Wavelength Lasers (edied by C.Yamanaka, Springer−Verlag, Berlin Heidelberg)
pp.208−214(1987).

6)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"An E−beam Pumped KrF Laser with Novel Long−life, High Transmittance Foils";
Proc.LASERS'84,pp.598−605,(1984).

7)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"High Efficiency E−beam Pumping of the KrF Laser
Through a Low Loss Foil Electrode"; Proc.BEAMS'86,pp.663−666,(1986).

8)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"Characteristics of E−beam Pumped KrF Laser System";
Proc.SPIE Vol.710,pp.7−14,(1986).

9)H.Takuma, K.Ueda, K.Hakuta, and H.Nishioka:
"Kinetic Processes in Ar−Kr−F2 System Interacting with Electron and Laser Beams";
Lasers in Atomic, Molecular, and Nuclear Physics
(edited by V.S.Letkhov, World Scientific, Singapore)pp.183−202(1987).

Ⅲ. 国際会議報告

〔 Invited Papers 〕

1)H.Nishioka, K.Kimura, K.Ueda and H.Takuma:
"High Compression Ratio Backward Raman Conversion for High Brightness KrF Laser Systems"; CLEO'91, Baltimore USA, May 12−17,(1991).

2)K.Ueda, H.Nishioka, K.Kimura, and H.Takuma:
"High Efficiency NS−to−PS Raman Pulse Compression for High Power KrF Lasers"; LASERS'91, San Diego USA, Dec.9−13,(1991).

3)H.Nishioka, K.Ueda, and H.Takuma:
"Saturable Absorber for Ultrashort Pulse KrF Lasers"; International Workshop on KrF Laser Technology,Santa Fe,USA,April 19−21,(1989).

4)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"Alternating Polarization Laser: A New Scheme of Laser Oscillation"; IQEC'86 Technical Digest Tu Ⅱ 4,p82,San Fransisco, June 9−13,(1986) .

5)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"Absorption Measurements of KrF Laser Amplifier"; International Workshop on KrF Laser Technology, Santa Fe,USA, April 19−21,(1989).

6)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"Characteristics of E−beam Pumped KrF Laser system"; SPIE'86 Cambridge,MA,USA, Sep.15−20,(1986).

7)H.Takuma, K.Ueda, K.Hakuta, and H.Nishioka:
"Recent Progress in High Power KrF Lasers"; CLEO'87 Technical Digest Tuo2,p96,Baltimore,USA, April 26−May 1,(1987).

8)K.Ueda, K.Hakuta, H.Nishioka and H.Takuma:
"Recent Progress on High Power KrF Lasers"; '87ICL Technical Digest TuH1,p46,Xiamen,Chaina,Nov.15−19,(1987).

9)H.Takuma, K.Ueda, and K.Hakuta, and H.Nishioka:
"Kinetic Processes in Ar−Kr−F2 System Interacting with Electron and Laser Beams"; 4th International School on Laser Applications in Atomic,Molecular, and Nuclear Physics, Vilnius,USSR Aug.22−29,(1987).

10)K.Ueda, A.Sasaki, H.Nishioka, and H.Takuma:
"A Scailing Law for High Efficiency Electron−beam Pumped KrF Lasers"; IQEC'88 Technical Digest ThF1,pp.672−673,Tokyo,Japan,July 18−21,(1988).

[Contributed Papers]

11)H.Nishioka, H.Kuranishi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Ultraviolet Saturable Absorber for KrF Laser Systems";
CLEO'89 Technical Digest THU1,pp.364–365,Baltimore,USA, April 24–28, (1989).

12)H.Nishioka, H.Kuranishi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Generation of 400fs Pulse in KrF Laser Amplifier with Saturable Absorber";
LASERS'89 New Orleans,USA Dec.3–8,(1989).

13)H.Nishioka, T.Kawasumi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Sub–ps KrF Laser and Its Application for Multi–Photon Absorption Measurements";
LASERS'90 San Diego, California,USA Dec.10–14,(1990).

14)H.Nishioka, H.Yoneda, K.Ueda, and H.Takuma:
"Toward The Super High Power KrF Lasers –
Generation of Ultra–short Pulse Using Saturable Absorber Acridine";
Proc.IAEA Technical committee meeting on drivers for inertial confinement fusion,
Osaka, Apr.15–19,(1991).

15)K.Ueda, H.Nishioka, H.Kuranishi, and H.Takuma:
"Sub–pico Second Pulse Generation from KrF Amplifier
Using Acridine Saturable Absorber";
OE/LASE'90 High Power Gas Lasers, Los Angeles,CA,USA Jan.14–19,(1990).

16)K.Ueda, H.Nishioka, H.Yoneda, and H.Takuma:
"Advanced Technique for Ultra–high Power and Ultra–short Pulse KrF Lasers";
Second JAPAN–CHAINA Symposium on Lasers Paper A20, Osaka JAPAN,
May 21–23,(1992) .

17)H.Nishioka, K.Kimura, K.Ueda, and H.Takuma:
"High Compression Ratio Backward Raman Conversion for High Brightness
Excimer Laser Systems"; Proc.IAEA Technical committee meeting on drivers
for inertial confinement fusion, Osaka, Apr.15–19,(1991).

18)H.Nishioka, K.Ueda, and H.Takuma:
"High Efficiency NS–to–PS Raman Pulse Compression";
Ⅲ rd Workshop on KrF Laser Teschnology, Rustherford Appleton Lab. Nov.3–8,(1992)

19)K.Ueda, H.Nishioka, K.Kimura, and H.Takuma:
"Advanced Techniques of High Efficiency Pulse Compressin for KrF Lasers";
Japan–US Seminar on Physics of High Power Laser Matter Interactions
Paper PS–1, Kyoto JAPAN,MAR.9–13,(1992).

20)H.Nishioka, T.Kawasumi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Observation of Multi-photon Absorption and Electron Avalanche in Optical Thin Films"; Japan-US Seminar on Physics of High Power Laser Matter Interactions Paper PS-2,Kyoto JAPAN,MAR.9-13,(1992).

21)H.Nishioka, T.Kawasumi, and K.Ueda:
"Detection of Avalanche Processes in Laser Induced Damage Formation of Short Wavelength Laser Optics"; Second JAPAN-CHAINA Symposium on Lasers Paper A18, Osaka JAPAN,May 21-23,(1992) .

22)H.Nishioka, K.Kurashima, K.Ueda, and H.Takuma:
"Strongly Saturated Gain Measurements and Kinetics Study of KrF Lasers"; Internatinal Symposium on short-Wavelength Lasers, Technical Digest T-p14,Osaka,Japan,Nov.11-13,(1987) .

23)H.Nishioka, T.Urakabe, T.Kurashima, K.Ueda, and H.Takuma:
"Study of Absorption in KrF Laser"; IQEC'88 Technical Digest MP6,pp.74-75,Tokyo,Japan,July 18-21,(1988).

24)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"Wide Range Gain Measurement of the Electron-beam-pumped KrF Laser"; CLEO'87 Technical Digest THK10,pp,246-247,Baltimore,USA, April 26-May 1,(1987)

25)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"An E-beam Pumped KrF Laser with Novel Long-life, High Transmittance Foils"; LASERS'84 Technical Digest DD5,p21,San Fransisco, Nov.26-30,(1984).

26)K.Ueda, H.NIshioka, A.Sasai, and H.Takuma:
"High Efficiency Uniformly Pumped KrF Laser by Electron Beam Excitation"; LASERS'84 Technical Digest DD6,p21,San Fransisico, Nov.26-30,(1984).

27)K.Ueda, A.Sasaki, H.Nishioka, and H.Takuma:
"Novel High Efficiency Diode for Electron-Beam Pumping for Excimer Lasers"; CLEO'85 Technical Digest WM24.p49,Baltimore, May 21-24,(1985).

28)K.Ueda, H,Nishioka, J.Ohta, S.Hagiwara, and H.Takuma:
"High Efficiency Electron Beam Pmped KrF Laser of 100J Class with High Output Power per Volume"; ClEO'85 Technical Digest ThF5,p69, Baltimore, May 21-24,(1985).

29)K.Ueda, H.Nishioka, H.Hisano, and H.Takuma:
"Faraday Rotator for UV Lasers and its Impact on KrF Laser Technology"; CLEO'85 Technical Digest ThM46,p69,Baltimore, May 21-24,(1985).

30)K.Ueda, H.Nishioka, A.Sasaki, and H.Takuma:
"Alternative Polarization Laser A New Scheme of Laser Oscillation";
Conference of Plasma Diagnostics, Column Lab.UK Sep.(1985).

31)K.Ueda, H.Nishioka, N.Morishita, T.Kaminaga, and H.Takuma:
"Alternative Polarization Output by a Short Pulse Injected KrF Laser
with a Intra−cavity Faraday Rotator";
LASERS'85 Technical Digest HB6,p16,Las Vegas, Dec.2−6,(1985).

32)K.Ueda, H.Nishioka, and H.Takuma:
"High Efficiency E−beam Pumping of the KrF Laser Through a Low Loss
Foil Electrode"; BEAMS'86 Technical Digest pO−B−1, Kobe, Japan, June 9−12,(1986).

33)K.Ueda, H.Yoneda, H.Nishioka, A.Sasaki, and H.Takuma:
"Present Status of High Power KrF Laser Systemsn of ILS, UEC
High Efficiency NS−to−PS Raman Pulse Compression";
Ⅲ rd Workshop on KrF Laser Teschnology, Rustherford Appleton Lab. Nov.3−8,(1992).

34)H.Nishioka, M.Ishiguro, T.Kawasumi, K.Ueda, and H.Takuma:
"Single−shot UV Autocorrelator using a Two−photon−induced Photoacoustic Signal
in Water"; CLEO'93 Technical Digest CFB1, Baltimore, USA, May 2−7,(1993).

Ⅳ. 研究会報告

1)「電子ビーム励起ＫｒＦレーザー増幅システムの動作特性」；
電気学会資料　OQD−84−9,pp.17−26,(1984).

2)「均一電子ビーム励起ＫｒＦレーザーシステム」；
電気学会資料　OQD−84−71,pp.11−18,(1984).

3)「大出力ＫｒＦレーザーの高効率動作」；
電気学会資料 OQD−85−11,pp.25−34,(1985).

4)「ＵＶファラデーローテータとＫｒＦレーザーへの応用
−ファラデー回転素子挿入型ＫｒＦレーザーによる偏光回転発振−」；
信学技報　OQE−85−47,pp.37−43,(1985).

5)「ＫｒＦレーザー用可飽和吸収体と超短パルス増幅」；
信学技報　OQD−89−34,pp.1−6,(1989).

6)「ＫｒＦレーザの高圧縮率ラマン変換」；
電気学会資料 OQD−91−5,pp.37−46,(1991).

7)「紫外誘電体多層膜鏡の短パルスレーザ耐力の測定」
電気学会資料 OQD−91−6,pp.47−55,(1991).

8)「紫外光学薄膜の損傷機構」;
電気学会資料 OQD−92−7,pp.61−70,(1992).

V. その他

学会口頭発表　５７件

電気学会「優秀論文発表賞」　平成４年