

# 飽和増幅素子固体色素を用いた高効率位相共役鏡

林 直之・尾松 孝茂\*・長谷川 朗・立田 光廣

千葉大学工学部情報画像工学科 〒263-0022 千葉市稲毛区弥生町 1-33

## Highly Efficient Phase Conjugator Using Saturable Amplifier Solid Dye

Naoyuki HAYASHI, Takashige OMATSU,\* Akira HASEGAWA and Mitsuhiro TATEDA

Department of Information and Image Sciences, Faculty of Engineering, Chiba University, 1-33, Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba 263-0022

We demonstrate highly efficient phase conjugation with a Rhodamine 6G dye doped polymer as saturable amplifier. The phase conjugate reflectivity reached up to 210% at probe and pump beam fluences of  $11 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  and  $5.3 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ , respectively.

### 1. はじめに

レーザー媒質の飽和増幅特性を用いた位相共役発生は、誘導放出によって形成された利得回折格子が非線形分極を誘起するため、プローブ光が入射してから、位相共役波が発生するまでの応答速度がナノ秒オーダーであること、レーザー媒質のもつ利得によって位相共役波が増幅作用を受けるので、位相共役波反射率が100%を超えること、等の魅力ある特徴をもつ。今までにNd:YAG<sup>1,2)</sup>, Nd:YVO<sub>4</sub><sup>3)</sup>, チタンサファイア<sup>4)</sup>結晶等のレーザー結晶を用いた研究が報告されている。

位相共役光学の応用分野は、レーザー MOPA システムのみならず、光画像情報処理、光コンピューター、光計測など広範囲にわたるが、これらの応用には応答する波長範囲の広い位相共役鏡が望ましい。レーザー利得波長範囲の広い固体レーザー結晶として、チタンサファイア結晶が挙げられるが、有効な非線形分極を誘起するのに必要な入射光フルエンスを示す飽和フルエンスが  $0.9 \text{ J}/\text{cm}^2$  ( $\lambda=795 \text{ nm}$ ) と大きい、大きい非線形分極を得るために強いポンプ光 ( $200\sim 300 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ ) を必要とする、等の欠点がある。

レーザー色素は、他のレーザー媒質と比較して桁違いに誘導放出断面積が大きい<sup>5,6)</sup>。そのため、わずかな入射光フルエンスで十分な飽和増幅効果を引き起こすことができる。すでにレーザー色素をメタノールに溶かした溶液を飽和増幅媒質として用いた位相共役波発生<sup>7,8)</sup>の報告がある。しかしながら、媒質が液体であるために、デバイス化、

素子の小型化、集積化には不向きであった。近年、レーザー色素をポリマー、ガラスにドープした固体レーザー色素<sup>9-13)</sup>が開発され、その損傷閾値も大幅に向上した。この固体レーザー色素がレーザー色素溶液同様、位相共役鏡として用いることができれば、デバイスの小型化、導波路化、集積化にきわめて有効であると考えられる。そこで、本論文でポリマードープローダミン 6G ( $\text{C}_{28}\text{H}_{31}\text{N}_{23}\text{Cl}$ ) 色素(以下、固体色素)を用いて、縮退四光波混合による位相共役波発生を行い、200%を超える反射率が得られたことを報告する。固体色素を用いた位相共役波発生<sup>7,8)</sup>の報告として、本論文は筆者らの知る限りでは、初めてのものである。

### 2. 実験

#### 2.1 固体色素の増幅特性

使用した固体色素は、ローダミン 6G 色素をポリマーマトリックス-polymethyl methacrylate にドープし固体化したもので、色素ドープ濃度は 0.2%wt.、大きさは、直径 5 cm、厚さ 0.8 cm である。この固体色素を、Nd:YAG レーザーの第二高調波 ( $\lambda=532 \text{ nm}$ , パルス幅 10 ns, 繰り返し 2.5 Hz) で励起し、固体色素に反転分布を誘起する。固体色素へ入射するフルエンスは約  $100 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  である。

この固体色素の小信号利得、飽和フルエンスを測定するためにプローブ光として、Nd:YAG レーザーの第三高調波励起色素(ローダミン 19) レーザー(発振波長 552~582 nm, パルス幅 10 ns, 発振線幅  $<0.1 \text{ cm}^{-1}$ ) を使用した。プローブ光の波長を変化させて、固体色素が有する小信号利得 ( $g_0$ ) の波長依存性を測定した (Fig. 1)。利得最大波長

\* E-mail: omatsu@image.tp.chiba-u.ac.jp

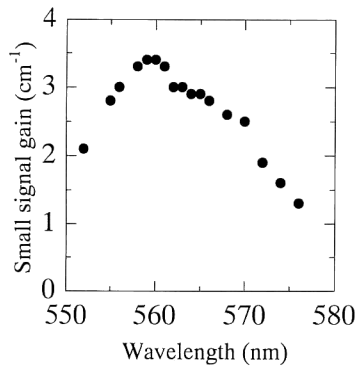


Fig. 1. Probe beam wavelength vs. small signal gain of solid dye.

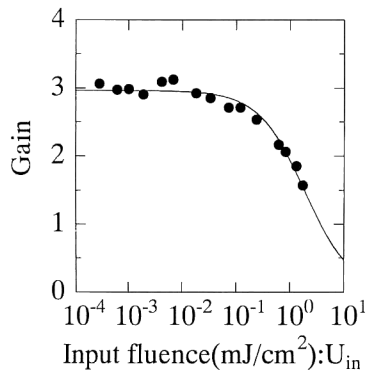


Fig. 2. Experimental plots and theoretical curve of saturable gain in solid dye at 560 nm.

は 559~561 nm にあり、通常の溶液色素に比べ、やや短波長側にずれている<sup>14)</sup>。本実験では、この固体色素の最も利得の大きい波長 560 nm をプローブ光、ポンプ光の波長に選んだ。Fig. 2 のグラフは、波長 560 nm における固体色素の飽和増幅特性を示したものである。

グラフ中の実線は、CW 動作におけるレーザー利得の飽和増幅特性を記述するのによく用いられる

$$U_{out} = U_{in} \exp\{g_0 L / (1 + U_{in} / U_s)\} \quad (1)$$

でフィッティングした増幅特性曲線である<sup>15)</sup>。ここで、 $U_s$  は飽和フルエンス、 $g_0$  は小信号利得、 $L (=0.8 \text{ cm})$  は固体色素の厚さを表している。この式から飽和フルエンス、小信号利得は、それぞれ  $1.9 \text{ mJ/cm}^2$ 、 $3.6 \text{ cm}^{-1}$  と評価できる。飽和フルエンスは、メタノール溶液に添加されたローダミン 6G 色素の値とほぼ同じで、固体色素が溶液色素と同程度の飽和増幅特性を示すことがわかる。

## 2.2 位相共役波反射率特性

### 2.2.1 実験

実験配置図を Fig. 3 に示す。固体色素に反転分布を誘起する励起光として Nd:YAG レーザーの第二高調波を用い、縮退四光波混合のプローブ光、ポンプ光の光源は色素

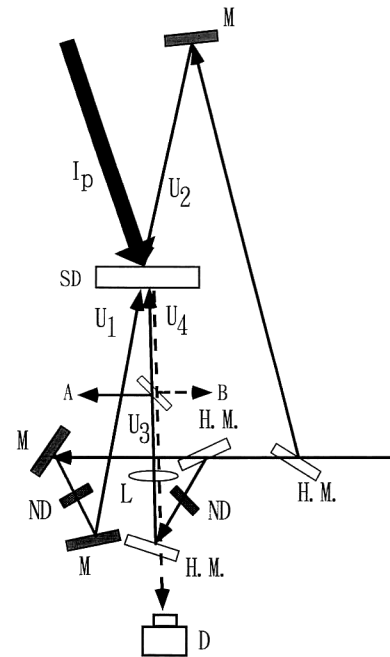


Fig. 3. Experimental setup. SD: Solid dye,  $U_1$ : forward pump light,  $U_2$ : backward pump light,  $U_3$ : probe light,  $U_4$ : phase conjugate light,  $I_p$ : inverting beam, M: mirror, H.M.: half mirror, L: lens, ND: neutral density filter, D: detector.

(ローダミン 19) レーザーを用いている。励起された固体色素へ、プローブ光、2つの対向するポンプ光を入射して縮退四光波混合を行う。レンズで集光されたプローブ光は、固体色素中で前進ポンプ光あるいは後進ポンプ光と干渉、利得回折格子を形成する。この利得回折格子によって、後進ポンプ光あるいは前進ポンプ光が回折され、位相共役波が発生する。励起光、プローブ光、対向する2つのポンプ光ビーム径は、それぞれ 10 mm, 3.8 mm, 5.7 mm である。位相共役波反射率を測定するために、ハーフミラーを透過する位相共役波のエネルギーをジュールメーターで測定した。前進ポンプ光の光路中に挿入したニュートラルデンシティフィルターによって、前進ポンプ光のフルエンスを調整しながら、位相共役波反射率を測定した結果が Fig. 4 である。ここでは、固体色素へ入射する直前のプローブ光のエネルギーと固体色素から出射した直後の位相共役波のエネルギーの比を位相共役波反射率として定義する。すなわち、Fig. 3 中のそれぞれ A, B 点で観測したエネルギーの比である。

グラフの横軸は、前進ポンプ光フルエンス、縦軸は前進ポンプ光フルエンスに対する位相共役波反射率を示している。これらのグラフ中のフルエンスは、波長 560 nm の固体色素の利得飽和フルエンス ( $U_s = 1.9 \text{ mJ/cm}^2$ ) で正規化されている。この配置では、プローブ光フルエンス  $7.6 \times$

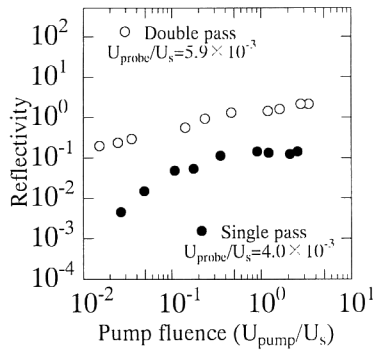


Fig. 4. Schematic diagram of (a) single pass and (b) double pass.

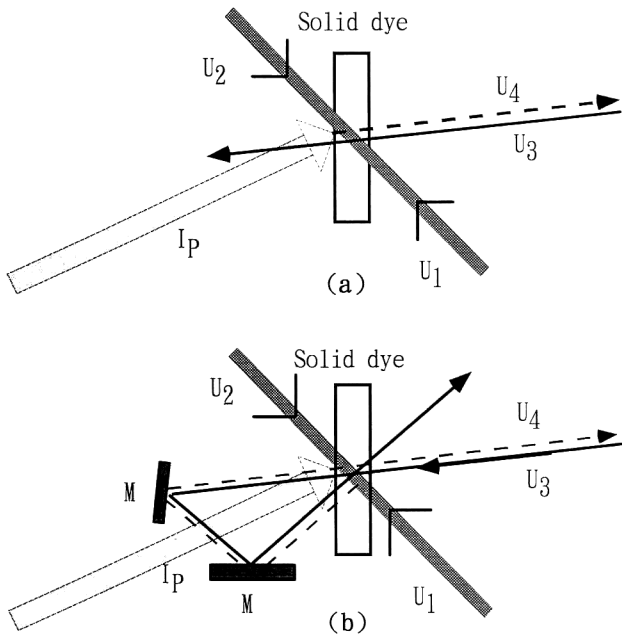


Fig. 5. Forward pump fluence vs. phase conjugate reflectivity.

$10^{-3} \text{ mJ/cm}^2$ , 前進ポンプ光フルエンス  $4.9 \text{ mJ/cm}^2$  のとき、最大反射率 14% が得られた。さらに高い位相共役波反射率を得るために、プローブ光をミラーで折り返し、もう一度、固体色素に戻すダブルパス配置<sup>2,16)</sup>(Fig. 5) について検討した。ここでいうパスとは、飽和増幅媒質である固体色素中をプローブ光が通過する回数を示しており、ポンプ光とプローブ光相互作用長を実効的に長くすることができる。ダブルパス配置では、ミラーによるプローブ光の反射光が位相共役波と近接した光路を通り観測面に向かって進行するため、位相共役波との分離が難しい。そこで、筆者らはプローブ光の折り返し光路中に 2 枚のミラーを配置し、ミラーによるプローブ光の反射光光路と位相共役波の光路を完全に分離した。また、プローブ光の集光レンズには  $f=2500 \text{ mm}$  のレンズを使用した。この配置では、前進

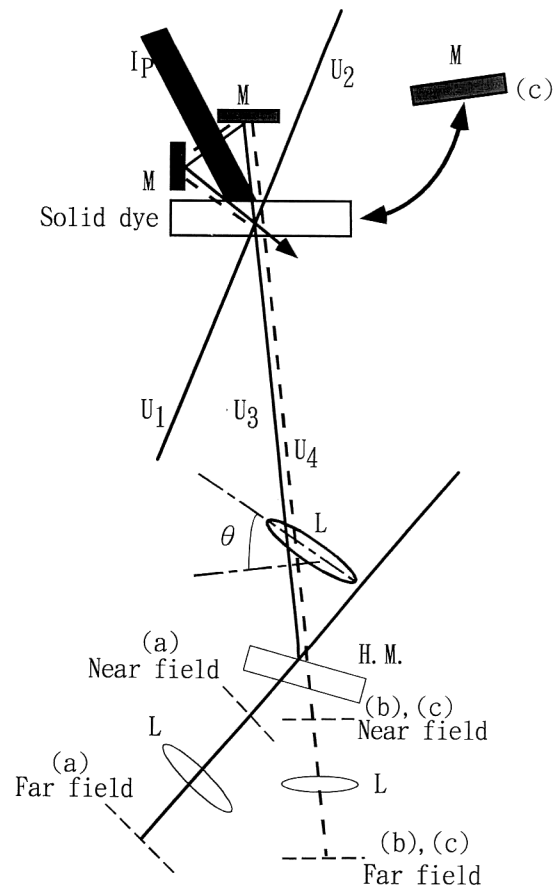


Fig. 6. Experimental setup. An angle  $\theta$  between optical axes of lens and probe beam is nearly equal to 20 degrees.

ポンプ光フルエンスが  $0.89 \text{ mJ/cm}^2$  を超えると位相共役波反射率は 100% を超え、最大では 210% というきわめて高い値が得られた。反射率特性は、ダブルパス配置でも一般的な縮退四光波混合の配置でも、反射率を除けば大差はみられない。ダブルパス配置のほうがやや低いポンプ光フルエンスで反射率が飽和する傾向があった。

また Nd:YAG 結晶を位相共役鏡として用いた場合には、ポンプ光フルエンスを Nd:YAG 結晶の利得飽和フルエンスの  $1/10 \sim 1/5$  にすると最大反射率が得られることが知られている<sup>17)</sup>。固体色素を用いた筆者らの実験では、ポンプ光フルエンスを固体色素の利得飽和フルエンスの 2~3 倍大きくして、はじめて最大反射率が観測された。これは、励起光（この場合、Nd:YAG レーザーの第二高調波）が引き起こす誘導放出によって、プローブ光、ポンプ光の波長での実効的な誘導放出断面積が低下することによるものである<sup>6,8)</sup>。

得られた位相共役波が真の位相共役波であることを確認するために、プローブ光の光路中に位相歪物体を挿入して、プローブ光、位相共役波の近視野像、遠視野像のビー

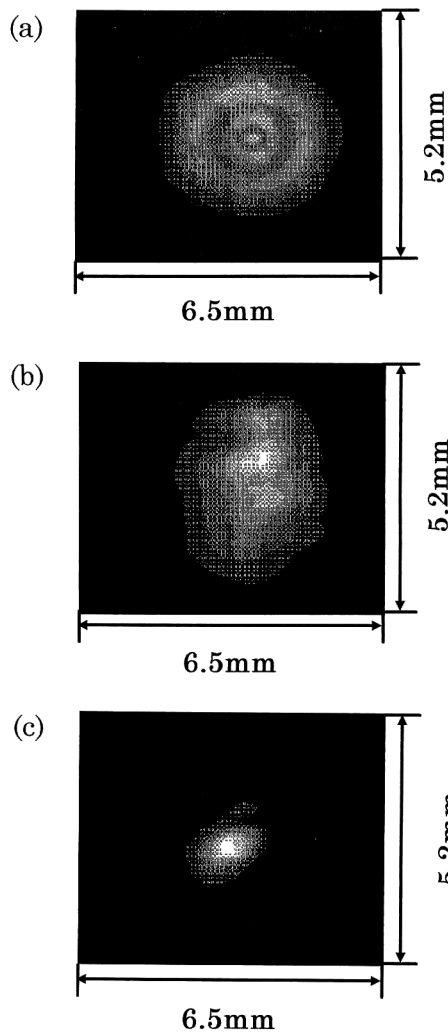


Fig. 7. Near-field patterns. (a) Probe beam, (b) phase conjugate beam, and (c) reflected beam from conventional mirror, respectively.

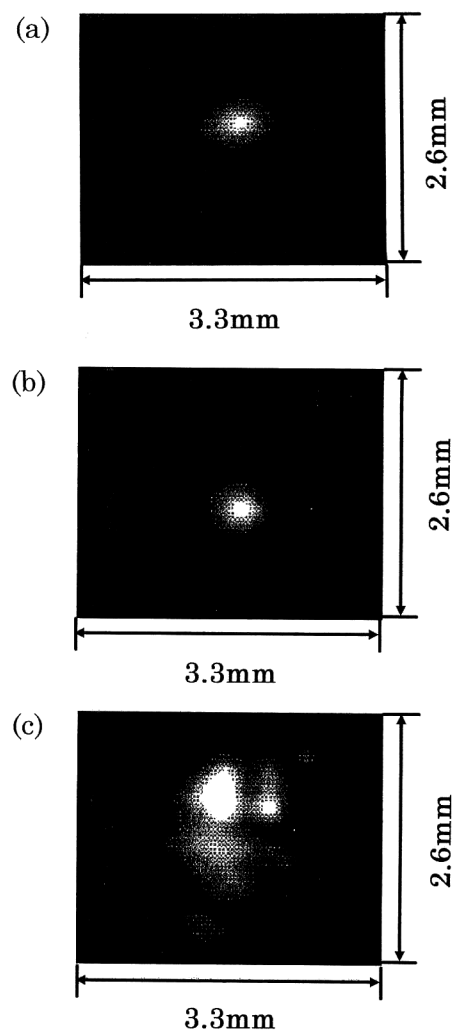


Fig. 8. Far-field patterns. (a) Probe beam, (b) phase conjugate beam, and (c) reflected beam from conventional mirror, respectively.

ムパターンを CCD カメラで観測した (Fig. 6). 位相歪物体には, 焦点距離 2500 mm, 径 30 mm の平凸レンズを光軸に対し  $20^\circ$  傾け, なおかつ光軸から 10 mm ずらして用いた. したがって, このレンズを通過するプローブ光は大きなコマ, 非点収差の影響を受けることになる.

プローブ光の近視野像, 遠視野像をそれぞれ Fig. 7(a), Fig. 8(a) に, 位相共役波の近視野像, 遠視野像をそれぞれ Fig. 7(b), Fig. 8(b) に示す. ここで示した近視野像はハーフミラーの位置におけるビームパターン, 遠視野像はこの近視野像をレンズ (焦点距離  $f=2000$  mm) で集光し, その焦点位置で観測したビームパターンである.

プローブ光の近視野像 (Fig. 7(a)) に比べ, 位相共役波の近視野像 (Fig. 7(b)) はやや縦長であるが, ほぼ同じ形状をもつ. 遠視野像も, プロブ光 (Fig. 8(a)), 位相共役波 (Fig. 8(b)) とともにほぼ同じガウスビーム状のビーム

パターンになる. これに対して, Fig. 7(c), Fig. 8(c) は, 位相共役鏡の代わりに, 通常の平面ミラーを用いて得られるプローブ光の反射光である. 近視野像, 遠視野像ともに元のビームパターンと大きく異なることがわかる. 特に遠視野像には, 位相歪物体として用いたレンズの収差の影響が顕著に現れている. 以上のことから, 本実験で観測された位相共役波の位相補償性が確認できた.

### 2.2.2 理論計算

得られた位相共役波反射率の妥当性を確認するために, 反射率の理論計算を行った. レーザー色素の飽和増幅効果を用いた位相共役波発生における理論計算は Soanらによって報告<sup>8)</sup>されている. 彼らの理論は, プロブ光が非線形媒質であるレーザー色素セルを 1 回だけ通過する通常の縮退四光波混合の配置を想定している. 筆者らの実験では, プロブ光は固体色素を通過後, ミラーで反射され, 再び

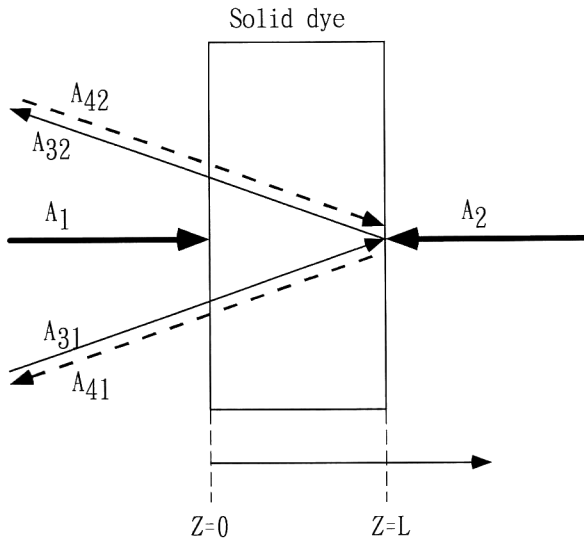


Fig. 9. Theoretical model.

固体色素を通過する。そこで、このことを考慮に入れた境界条件<sup>16)</sup>を導入し、位相共役波反射率を計算した。

計算を簡単にするために、プローブ光、位相共役波に対しポンプ光が非常に大きい、透過型回折格子のみが存在する、という条件を仮定した。結合波方程式<sup>8,18-20)</sup>は次のように記述される。

$$\begin{aligned}
 dA_1/dz &= g_0 \gamma(z) A_1 \\
 dA_2/dz &= -g_0 \gamma(z) A_2 \\
 dA_{31}/dz &= g_0 [\gamma(z) A_{31} + \kappa(z) A_1] \\
 dA_{32}/dz &= -g_0 [\gamma(z) A_{32} + \kappa(z) A_2] \\
 dA_{41}/dz &= -g_0 [\gamma(z) A_{41} + \kappa(z) A_2] \\
 dA_{42}/dz &= g_0 [\gamma(z) A_{42} + \kappa(z) A_1] \quad (2)
 \end{aligned}$$

$A_1, A_2, A_{3j}, A_{4j} (j=1, 2)$  は、それぞれ前進ポンプ光、後進ポンプ光、プローブ光、位相共役光の振幅である。プローブ光、位相共役波の振幅に付いている添え字はプローブ光が固体色素を通過する回数を示し、 $A_{31}$  は  $A_{41}$  のみと、 $A_{32}$  は  $A_{42}$  のみと相互作用すると仮定した (Fig. 9)。 $\gamma$  は飽和増幅、 $\kappa$  は非線形結合、 $U_{SE}$  は実効飽和増幅フルエンスを表し、次式で記述される。

$$\gamma = (S^2 - C^2)^{-1/2} \quad (3)$$

$$\kappa = C^{-1} \{1 - S(S^2 - C^2)^{-1/2}\} \quad (4)$$

$$S = 1 + \sum_{i=1}^4 A_i / U_{SE} \quad (5)$$

$$C = 2(A_1 A_3 + A_2 A_4) / U_{SE} \quad (6)$$

また、結合波方程式の境界条件は次のように与えられる。

$$A_{32}(L) = A_{31}(L) \quad (7)$$

$$A_{42}(L) = A_{41}(L) \quad (8)$$

$$A_{42}(0) = 0 \quad (9)$$

レーザー色素では、反転分布を形成する励起光と、誘導

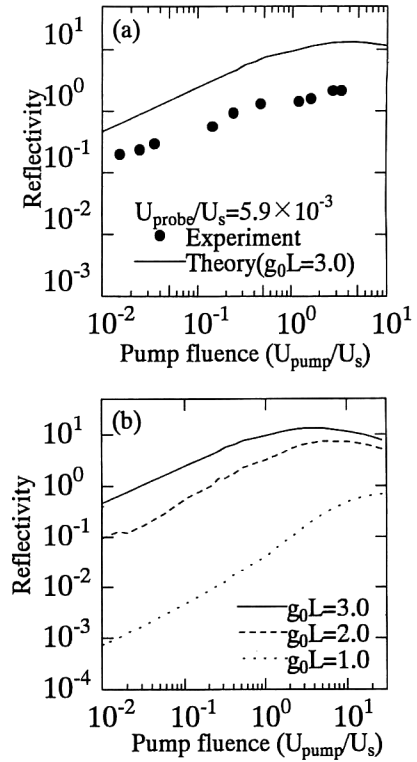


Fig. 10. Theoretical dependence of phase conjugate reflectivity on forward pump fluence at  $U_{probe}/U_s = 5.9 \times 10^{-3}$ .

放出を引き起こすレーザー発光波長間の差が小さく、励起光による励起と同時に誘導放出も無視できない。このことは、実効的な飽和増幅フルエンスを大きくする。結果として、固体色素の実効的な飽和増幅フルエンス  $U_{SE}$ 、飽和増幅フルエンス  $U_s (= 1.9 \text{ mJ/cm}^2)$ 、波長 560 nm)、固体色素に入射する励起光フルエンス  $U_p (= 100 \text{ mJ/cm}^2)$ 、飽和吸収フルエンス  $U_A (= 1.0 \text{ mJ/cm}^2)$ 、波長 532 nm)の間には、次式のような関係が成り立つ。

$$U_{SE} = U_s (1 + U_p / U_A) \quad (10)$$

三重項状態への交差緩和時間は励起光である Nd: YAG レーザーの第二高調波、縮退四光波混合に用いた色素レーザーのパルス幅 10 ns に比べて十分長いので、ここでは無視している。

境界条件式 (7)~(9) において、 $L$  は固体色素の厚さである。式 (7), (9) において、プローブ光と位相共役波のミラーでの反射損失は無視している。これらの方程式を解いて、位相共役波反射率 ( $R_{pc}$ ) は次のように求められる。

$$R_{pc} = |A_{41}(0)|^2 / |A_{31}(0)|^2 \quad (11)$$

固体色素の有する利得を  $g_0 L = 3.0 (L = 0.8 \text{ cm})$ 、後進ポンプ光フルエンスを  $6.5 \text{ mJ/cm}^2$  とし、前進ポンプ光フルエンスをパラメーターとして、変化させながら得られた位相共役波反射率の計算結果を Fig.10(a) の実線で示す。理

論計算で得られた位相共役波反射率特性は測定値に比べ、絶対値は異なるものの、前進ポンプ光フルエンス  $U_{\text{pump}} \approx 2 \sim 3 U_s$  で反射率は最大になり、両者は非常によく一致している。測定値、理論計算の反射率の絶対値の差が生じる理由として、次の点が考えられる。筆者らは、固体色素の厚さ方向に対し利得が一定であるとして計算を行った。実際には、励起光フルエンスは固体色素による吸収によって厚さ方向に向かって減少する。この結果、レーザー利得は厚さ方向に対して分布をもつ。このレーザー利得の厚み方向分布が、実験値と理論における最大反射率の差を生み出す要因として考えられる。

後進ポンプ光フルエンスを  $6.5 \text{ mJ/cm}^2$  とし、固体色素の利得 ( $g_0 L$ ) と前進ポンプ光フルエンスをパラメーターとした位相共役波反射率の計算結果を Fig.10(b) に示す。利得が大きくなると、最大位相共役波反射率は増大する。それと同時に、最大反射率が得られるポンプ光フルエンスも小さくなるのがわかる。

### 3. ま と め

本研究では、ローダミン 6G 色素をポリマー中に固定した固体色素の飽和増幅特性を利用して、縮退四光波混合を行い位相共役波発生を確認した。

プローブ光をミラーで折り返し、固体レーザー色素へ戻すダブルパス配置を用いて、位相共役波の最高反射率 210% が得られた。このとき、四光波混合に必要なポンプ光フルエンスは  $7 \text{ mJ/cm}^2$  であった。この高い反射率から、固体色素が従来から利用されているレーザー色素溶液と遜色ない非線形光学特性を示すことがわかった。また、従来、波長可変固体レーザー素子として報告されているチタンサファイア結晶に比べ、位相共役波発生を行うのに要するフルエンスは、オーダーにして  $10^{-2} \sim 10^{-3}$  と小さい。また、位相共役波反射率の理論計算を行い、測定値と理論値は最大反射率を得るポンプ光フルエンスの点で非常によく一致した。

本研究は固体レーザー色素が位相共役鏡へ応用可能であることを示したものである。レーザー色素の種類は数多く、その発光スペクトルは可視から近赤外に至る波長域を完全に含む固体色素、チタンサファイア結晶に代わり、低入力動作可能な高効率位相共役鏡として有望な材料といえる。

### 文 献

- 1) A. Tomita: "Phase conjugation using gain saturation of a Nd: YAG laser," *Appl. Phys. Lett.*, **34** (1979) 463-464.
- 2) G. J. Crofts, R. P. M. Green and M. J. Damzen: "Investiga-

- tion of multipass geometries for efficient degenerated four-wave mixing in Nd: YAG laser," *Opt. Lett.*, **17** (1992) 920-922.
- 3) A. Brignon, G. Feugnet, J.-P. Huignard and J.-P. Pocholle: "Efficient degenerated four-wave mixing in a diode-pumped microchip Nd: YVO<sub>4</sub> amplifier," *Opt. Lett.*, **20** (1995) 548-550.
- 4) G. J. Crofts, X. Banti and M. J. Damzen: "Tunable phase conjugation in a Ti: sapphire amplifier," *Opt. Lett.*, **20** (1995) 1634-1636.
- 5) 佐々木孝友: "新固体レーザー材料と非線形光学結晶", *応用物理*, **64** (1995) 878-887.
- 6) P. R. Hammond: "Spectra of the lowest excited singlet states of Rhodamine 6G and Rhodamine B," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-15** (1979) 624-632.
- 7) J. C. Diels, I. C. McMichel and H. Vanherzeele: "Degenerated four-wave mixing of picosecond pulses in the saturable amplification of a dye laser," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-20** (1984) 630-636.
- 8) P. J. Soan, A. D. Case, M. J. Damzen and M. H. R. Hutchison: "High-reflectivity four-wave mixing by saturable gain in Rhodamine 6G dye," *Opt. Lett.*, **17** (1992) 781-783.
- 9) D. Avinar, D. Levy and R. Reisfeld: "The nature of the silica as reflected by spectral changes and enhanced photostability of trapped Rhodamine 6G," *J. Phys. Chem.*, **88** (1984) 5956-5959.
- 10) G. R. Kumar, B. P. Singh and K. K. Sharma: "Optical phase conjugate in Rhodamine-6G doped boric acid glass," *Opt. Commun.*, **73** (1989) 81-84.
- 11) J. I. Zink and B. S. Dunn: "Photonic materials by the sol-gel process," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **99** (1991) 878-893.
- 12) K. Divakara and K. K. Sharma: "Dispersion of the induced optical nonlinearity in Rhodamine 6G doped boric acid glass," *Opt. Commun.*, **119** (1995) 132-138.
- 13) J. C. Altmann, R. E. Stone, F. Nishida and B. Dunn: "Dye-activated ORMOSILS for laser and optical amplifiers," *Proc. SPIE*, **1758** (1995) 507.
- 14) W. Hatrig: "High power dye-laser pumped by the second harmonic of a Nd: YAG laser," *Opt. Commun.*, **27** (1978) 447-450.
- 15) A. E. Siegman: *Lasers* (University Science Books, Mill Valley, California, 1986) pp. 297-306.
- 16) A. Brignon, G. Feugnet, J.-P. Hugnard and J.-P. Pocholle: "Multipass degenerated four-wave mixing in a diode-pumped Nd: YVO<sub>4</sub> saturable amplifier," *J. Opt. Soc. Am. B*, **12** (1995) 1316-1324.
- 17) A. Brignon and J.-P. Huignard: "Transient analysis of degenerated four-wave mixing with orthogonally polarized pump beams in a saturable Nd: YAG amplifier," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-30** (1994) 2203-2210.
- 18) R. L. Abrams and R. C. Lind: "Degenerated four-wave mixing in absorbing media," *Opt. Lett.*, **2** (1978) 94-96.
- 19) J. L. Walsh and I. Reintjes: "Effects of finite probe intensity on degenerate frequency mixing in saturable amplifiers," *Opt. Commun.*, **48** (1983) 221-228.
- 20) R. P. M. Green, G. J. Crofts and M. J. Damzen: "Phase conjugate reflectivity and diffraction efficiency of gain gratings in Nd: YAG," *Opt. Commun.*, **102** (1993) 288-292.