

## 博士學位論文要旨等の公表

学位規則（昭和28年4月1日文部省令第9号）第8条に基づき、当該博士の学位の授与に係る論文の内容の要旨及び論文審査の結果の要旨を公表する。

氏名	中井 直也
学位の種類	博士（理工学）
報告番号	甲第8号
学位授与の要件	学位規程第4条第2項該当
学位授与年月日	平成21年3月21日
学位論文題目	「 回折格子を用いた 新機能固体化色素レーザーの研究 」
論文審査委員	主査 教授 浜中 宏一 委員 教授 小林 壮一 委員 教授 川辺 豊 委員 准教授 福田 誠

# 学 位 論 文 要 旨

光科学研究科 光科学専攻

学籍番号 : D2060030

氏 名 : \_\_\_\_\_ 中井 直也 \_\_\_\_\_

## 回折格子を用いた新機能固体化色素レーザー

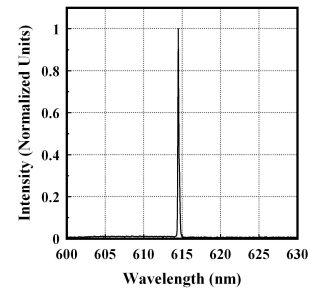
近年、科学技術の様々な分野において、レーザーデバイスが大きな役割を果たしている。計測、加工、環境、医療等、多岐にわたってその用途が見いだされ、現代の工業技術において不可欠な存在となっている。しかし、現在市販されているレーザー装置の多くはその発振波長がごく限られており、必要とする波長を任意に選択することは難しい。可視光域の光増幅媒質として有機色素は魅力的である。本研究では、有機色素がもつ広帯域にわたる光の増幅特性に着目し、回折格子と固体化色素を組み合わせた実用的なレーザーデバイスの実現を目標に、回折格子の作製法の開発および各種のDFB(Distributed Feedback)固体化色素レーザー素子の作製について検討し、それらの評価を行った。

有機色素は、可視光域でのレーザー発振を容易に行うことができるレーザー活性媒質として、1970年代から研究されている。しかし、これまでの色素レーザーは、エーテル等の溶液中に有機色素を溶解し、この色素溶液を循環しながら励起およびレーザー発振する構造であるため、溶液を循環させるためのポンプと循環路、レーザー発振機構等、大がかりな装置を必要としていた。そのため、本研究では、高利得で扱い易いという特性を生かし、小型で簡便な構造を持ち、レーザー活性媒質として有機色素を用いた可視光域におけるDFB固体化色素レーザー発振を試みた。DFBレーザーにおいてその性能を左右するのは回折格子(製回折格子)である。DFBレーザーに用いられる回折格子には、波長程度の周期の凹凸形状をもつレリーフ型回折格子と屈折率を周期的に変調した屈折率変調型の回折格子があるが、本研究では色素分子がもつ大きな光増幅率を十分に活かすことができるレリーフ型回折格子を採用した。本研究では、回折効率が大きく固体化色素レーザーの共振器としての回折格子を作製する方法を検討し、He-Cdレーザーを光源とした二光束干渉露光を応用した、コンピューター制御による全自動の露光システムを構築して任意のピッチを有する回折格子を短時間に作製することに成功した。本研究で作製した回折格子を評価したところピッチ800nmで溝の深さが500nm以上、1次回折効率が34%、2次回折効率が14%というDFB固体化色素レーザーの発振に必要な十分な性能をもつレジスト製回折格子を作製することに成功した。また、作製したフォトレジスト製の回折格子を金型の代用とし、アクリル樹脂やゾルーゲル法によるキセロゲル薄膜にプレス加工することで、レジスト製回折格子よりも格段に耐久性に優れた回折格子を容易に作製する方法を考案した。特に、アクリル樹脂上に周期構造をプレス加工によって転写する方法では、型となる物質を溶解せず、アクリル樹脂表面を溶解させる様な有機溶媒を用いることで常温下でのプレス加工を可能とする非常に特色のある技術を開発し、走査型電子顕微鏡による表面観察では、型となるフォトレジスト製回折格子の構造が緻密に転写されていることがわかった。また、回折効率の計測でも、型となる回折格子とほぼ同一の性能が得られ、レーザー照射に対する耐久性においてもフォトレジスト製回折格子の

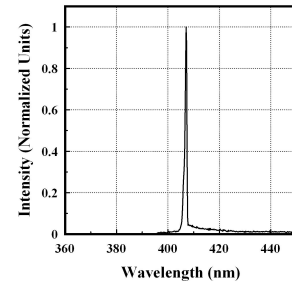
10 倍以上の性能があることが明らかとなった。次に、上記の方法で作製した回折格子と薄膜状に固体化した有機色素を用いて DFB 固体化色素レーザーを作製し、Nd:YAG レーザーの第 2 高調波 (波長 532nm) あるいは第 3 高調波 (波長 355nm) で励起したところ図 1 に示すように半値全幅が 0.1 nm 程度に狭帯域化されたレーザースペクトルを計測した。図 1(a)はレーザー媒質として Rhodamine-B を用いレジスト製回折格子を共振器として 615 nm で発振を行った際のスペクトル、(b)は Stilbene420 とアクリル製回折格子によって 403 nm で発振を行った際のスペクトルである。また、図 2 は Rhodamine-B をレーザー媒質とし、レジスト製回折格子およびアクリル製回折格子をそれぞれ共振器として用いたときの入出力特性の実測値である。これらのデータから本研究で作製した回折格子は DFB 固体化色素レーザーの共振器として動作することが明らかとなり、優れたレーザー特性を実現した。本研究では回折格子を応用した固体化色素レーザーを高機能化することを目標に、ホログラフィック DFB 固体化色素レーザーを作製し、DFB 固体化色素レーザーの出力エネルギーを 1 mJ まで高出力化するとともに薄膜タイプの DFB レーザーで問題となっていた素子寿命も 100 倍に増大することに成功した。次にこのホログラフィック固体化色素 DFB レーザーを用いてそのレーザーのパルス幅を圧縮することで、1 パルスあたりのピークパワーを向上することを考えた。これが実現できれば、小型で扱いが容易な医療用レーザー等への応用や、化学分析、小型の加工用レーザーとしての用途も視野に入ることになる。そこで、本研究では前記の二光束干渉露光における光学系を一部変更することによって、回折格子の周期が位置の関数になるようないわゆるチャープ製回折格子を作製し、これをホログラフィック DFB 固体化色素レーザーの共振器として広帯域の多モード発振を実現した。レーザー媒質として Rhodamine-B を用いパルス圧縮をおこなうために過飽和吸収色素を混合した。モードロックをかけるためにホログラフィック DFB レーザーを 2 枚のミラーによるファブリペロー共振器の中に設置し、Nd:YAG レーザーの第 2 高調波で励起したところ、モードロックなしで 5 ns であったパルス幅を図 3 に示すように 53 ps (0.053 ns)までおよそ 100 分の 1 に圧縮することに成功した。

本研究では、前記の回折格子作製方法を応用して、光の波長程度の周期をもつモアレ縞を作り出すことにも成功しており、これを DFB 固体化色素レーザーの共振器として用いることを試みた。その結果 590, 600, 610, 620 および 630 nm の波長においてスペクトル幅が 0.5nm 程度のレーザー発振に成功し、モアレ縞がレーザー共振器として機能することも明らかにした。

以上、二光束干渉露光を応用してレジスト製回折格子およびアクリル製回折格子の作製方法を開発し、レーザー媒質として固体化色素と組み合わせることにより、小型で取り扱いが容易な DFB 固体化色素レーザーを作製し、その特性を評価し、スペクトル幅が狭帯域化された可視光域でのパルスレーザーを開発することに成功した。さらに、高出力化および短パルス化についても研究を行い、実用的なレーザー光源としての固体化色素レーザーを実現した。



(a)RhodamineB+レジスト製回折格子



(b)RhodamineB+アクリル製回折格子

図 1 DFB レーザーのスペクトル

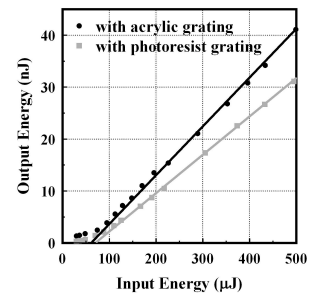


図 2 DFB 固体化色素レーザーの入出力特性

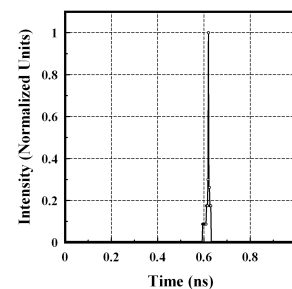


図 3 モードロックによるレーザーパルスの圧縮

## 論文審査の結果の要旨

本研究は、新機能固体化色素レーザーを目指して、(1) 二光束干渉露光による回折格子の作製法に関する研究、(2) 回折格子を光共振器とする DFB 固体化色素レーザーの研究、(3) 固体化色素レーザーの高性能化の研究を行った。この研究成果の詳細を 2009 年 2 月 12 日の学位論文発表会（公聴会）において発表した。

(1) の回折格子作製については、He-Cd レーザーによる二光束干渉露光により、回折効率が 36 % におよぶフォトレジスト製のレリーフタイプの回折格子を、コンピューター制御によって再現性よく作製する方法を確立した。さらにフォトレジスト製回折格子を、アクリル基板、シリカ基板の表面に精度よくパターン転写する方法を考案し、高耐久性のアクリル製回折格子、シリカ製回折格子を作製した。次に、(2) の研究では、回折格子と固体化した有機色素を最適に組み合わせる方法を検討し、薄膜タイプの DFB（分布帰還型）固体化色素レーザーの作製を試み、青色および赤色の波長領域においてスペクトル幅が 0.1nm 以下に狭帯域化されたパルスレーザーの発振を実現した。さらに、レーザー媒質をバルク体としてホログラフィック DFB 固体化色素レーザーを世界で初めて発振させ、最大出力 1.2mJ/pulse を実現した。最後に、(3) の研究においては二光束干渉露光を複数回行うことによって、二次元の光回折デバイスを作製できることを示した。その中でも、モアレ縞を回折格子とした DFB 固体化色素レーザーを独創的な方法によって作製し、そのレーザー発振を初めて示すことに成功した。さらに、回折格子の周期が連続的に変化するチャープグレーティングを作製し、ホログラフィック DFB 固体化色素レーザーを広帯域化して、モードロックをかけることにより、励起パルスのレーザー幅 5ns をレーザー幅 31ps にまで圧縮できることを示した。

上述の種々の固体化色素レーザーは、ほとんどが初めて報告されたもので、色素レーザーの新たな応用を開く先導的な研究と言える。

発表終了後に、参加された先生方より多くの質疑をいただいた。主な内容としては、①回折格子および DFB 固体化色素レーザー作製における精度および再現性、②DFB 固体化色素レーザーの応用分野、③レーザーパルスの圧縮における問題点などであった。申請者はこれらの質問に対して、準備してあった図面を有効に用いて説明した。

以上の結果より、本論文は千歳科学技術大学大学院学則第 25 条および千歳科学技術大学学位規定の定めるところにより、博士（理工学）の学位を授与するに十分との結論に達した。