

# 様式 C-19

## 科学研究費補助金研究成果報告書

平成 21 年 5 月 25 日現在

研究種目：特別研究促進費  
研究期間：2008 年度  
課題番号：20900113  
研究課題名（和文） 準無秩序系光制御による導波路希土類錯体レーザー  
研究課題名（英文） Organic waveguide laser based on random active layer containing a rare-earth complex  
研究代表者 尾松孝茂 (TAKASHIGE OMATSU) 千葉大学・大学院融合科学研究科・教授  
30241938

### 研究成果の概要：

Eu(hfa-D)<sub>3</sub>(DPFBPO)<sub>2</sub> を PMMA に分散させた試料を用いてフェムト秒レーザーによる縮退四光波混合を行った。入射光強度をパルス幅とレーザービーム径から換算すると 2~3GW/cm<sup>2</sup> である。入射した二光束によって二光子吸収を介して形成された振幅型回折格子によって四光波混合が起こり、自己回折光である前方位相共役波が発生する。この位相共役波の光強度をポンプ光強度を変化させながら観測したところ入射光強度の 5 乗に比例することから、二光子吸収によって発生した位相共役波であることが確認できた。

### 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
20 年度	1,800,000	0	1,800,000
年度			
年度			
年度			
年度			
総計	1,800,000	0	1,800,000

研究分野：レーザー、非線形光学

科研費の分科・細目：応用物理学/工学基礎・量子光工学/応用光学

キーワード：レーザー、非線形光学、有機フォトニクス、導波路光学

## 1. 研究開始当初の背景

低い振動エネルギーを持つ配位子と結合した  $\text{Nd}^{3+}$ 、 $\text{Eu}^{3+}$  などの希土類イオン(光機能性希土類錯体)は、有機媒質中でもフォノン緩和による失活が起こらず強い発光を示す。また、近赤外で発光を放つ結晶中の希土類イオンとは異なり、可視域で発光を放つ希土類錯体は極めて興味深い。しかしながら、一般にその発光収率は小さくレーザー発振に至る報告例は未だ数少ない。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は準無秩序系における光制御によって光機能性希土類錯体のポテンシャルを極限まで引き出し、革新的な希土類系有機レーザーを創製することにある。

準無秩序系光制御とは、無秩序系における散乱波干渉による光アンダーソン局在、秩序系において起こる規則干渉によるフォトニックバンドの両者の手法を部分的に共存させることで互いの欠点を補完しあう、フォトニック構造による無秩序系の発光制御である。

本研究では、準無秩序系における光制御、具体的には散乱中心となるナノ微粒子を含むポリマー中での光機能性希土類錯体発光の一次元フォトニック制御、によって低閾値でかつ高効率な可視有機レーザーを創製することを目指す。

## 3. 研究の方法

光機能性希土類錯体のレーザー材料、非線形光学材料としての光物性を明らかにするため、本研究では、以下の3項目について研究を行った。

- 1) Eu 錯体の二光子吸収特性の評価
  - 2) Eu 錯体分散ポリマーを用いた縮退四光波混合
  - 3) 新規青色発光材料を用いた有機導波路レーザー
- 3)については、今後、準無秩序系における光制御を適用して、高効率レーザー発振を狙う。

## 4. 研究成果

### 1) Eu 錯体導波路レーザー

$\text{Eu}(\text{hfa-D})_3(\text{DPFBPO})_2$  を PMMA に分散させた試料を作成した。 $\text{Eu}(\text{hfa-D})_3(\text{DPFBPO})_2$  の溶媒には、発光特性が良好であった THF を用いている。分散濃度はそれぞれ、5wt.%、1.6wt.% である。 $\text{Eu}(\text{hfa-D})_3(\text{DPFBPO})_2$  の吸収が 355nm にあるので、ピコ秒パルス Nd:YAG レーザー (~15ps) の 3 倍波を用いて実験を行った。Eu 特

有の 610nm に強い発光が見られるが、励起光フルエンス (~11mJ/cm<sup>2</sup>) を大きくしても ASE によるスペクトル狭窄化は見えない。発光寿命はおおよそ ~100ns であったため、Q 値の高い共振器(共振器長 ~1.5cm、ミラー反射率 >99% @ 610nm、曲率半径 10cm) を構築し、側面励起法を用いてレーザー発振を試みたが、未だレーザー発振には至っていない。

### 2) Eu 錯体の非線形光学特性

$\text{Eu}(\text{hfa-D})_3(\text{DPFBPO})_2$  を PMMA に分散させた試料を石英セル中で熱重合させて作成した。 $\text{Eu}(\text{hfa-D})_3(\text{DPFBPO})_2$  の溶媒には、発光特性が良好であった THF を用いている。分散濃度は 5wt.% である。 $\text{Eu}(\text{hfa-D})_3(\text{DPFBPO})_2$  の吸収は 350-400nm にあり、マトリックスに使用した PMMA の吸収は 350nm 帯にあるので、PMMA の吸収を避け希土類錯体を選択的に励起するため、フェムト秒チタンサファイアレーザー(150fs, 778nm)を用いて 2 光子吸収励起を行った。

実際、778nm 励起により 610nm 近傍に Eu 特有の発光が確認できた。励起強度に対する発光強度は 2 次関数的に増加することから、二光子吸収励起発光であることがわかる。比較のため、フェムト秒レーザーの 2 倍波(389nm)による 1 光子励起も行った。2 光子吸収と 1 光子吸収で発光スペクトルはほとんど変わらない。また、スペクトル形状はピコ秒パルス励起時ともほぼ同じであった。

次に、PMMA の非線形効果を避けて Eu の非線形効果を支配的に利用するため、回折格子対を用いてパルス幅を 800fs まで伸長し縮退四光波混合を行った。プローブ光-ポンプ光の光量比は 1:1 である。2 光束間には位相整合が石英セル全長で成立するように、2 光束間のなす角度は ~6mrad に設定した。

入射光強度をパルス幅とレーザービーム径から換算すると 2~3GW/cm<sup>2</sup> である。入射した二光束によって二光子吸収を介して形成された振幅型回折格子によって四光波混合が起こり、自己回折光である前方位相共役波が発生する。この位相共役波の光強度をポンプ光強度を変化させながら観測したところ図 1 のように入射光強度の 5 乗に比例することから、二光子吸収によって発生した位相共役波であることが確認できた。

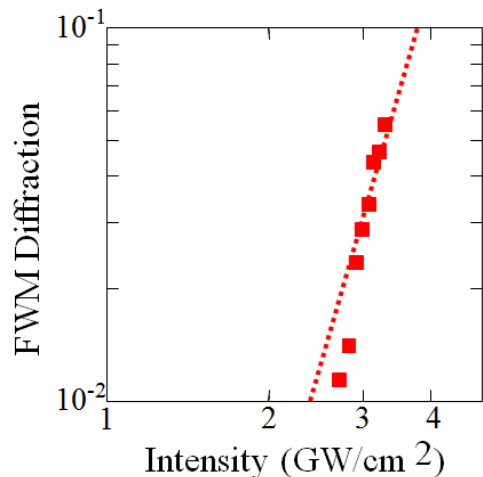


図1 位相共役波の回折効率

### 3) 青色有機導波路レーザー

従来より、青色領域で発振する有機色素としてクマリン系色素が知られているが、退色が激しく実用性に乏しい。青色領域で安定に使用できる有機色素の探索は有機レーザー開発にとって最も重要な研究課題である。本研究で使用したFluorescent Brightener 135(FB135)はクマリンに比べ光退色が少なく誘導放出断面積もローダミンと同等である。図5の写真は加熱重合により作成したFB135 ドープPMMAである。励起光にピコ秒Nd:YAGレーザー第3高調波(355nm)を用いて光DFBによって発振したレーザースペクトルを図6に示す。423nmで縦シングルモードで発振していることがわかる。素子寿命は3000ショットを超えることを実験的に確認した。

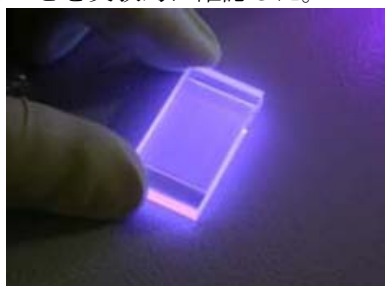


図2 青色有機導波路レーザー

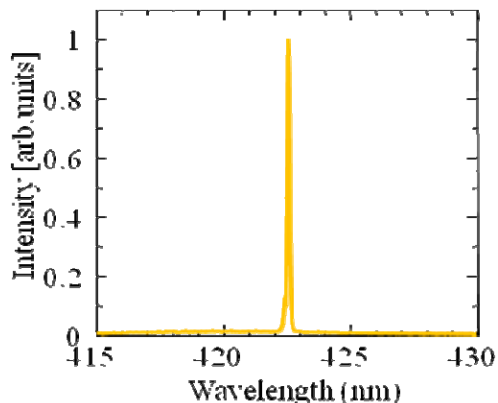


図2 青色有機導波路レーザー発振スペクトル

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7 件)

1) N. Shiba, Y. Morimoto, K. Nawata, K. Furuki, Y. Tanaka, M. Okida, T. Omatsu, "Picosecond master-oscillator, power-amplifier system based on a mixed vanadate phase conjugate bounce amplifier", *Optics Express*, **16** Issue 21, (2008) 16382-16389.

2) M. Ostermeyer, H.J. Kong, V.I. Kovalev, R.G. Harrison, A.A. Fotiadi, P. Mégret, M. Kalal, O. Slezak, J.W. Yoon, J.S. Shin, D.H. Beak, S.K. Lee, Z. Lü, S. Wang, D. Lin, J.C. Knight, N.E. Kotova, A. Sträßer, A. Scheikh-Obeid, T. Riesbeck, S. Meister, H.J. Eichler, Y. Wang, W. He, H. Yoshida, H. Fujita, M. Nakatsuka, T. Hatae, H. Park, C. Lim, T. Omatsu, K. Nawata, N. Shiba, O.L. Antipov, M.S. Kuznetsov and N.G. Zakharov, "Trends in stimulated Brillouin scattering and optical phase conjugation", *Laser and particle beams*, **26** No.3 (2008) 297-362.

3) 尾松孝茂、縄田耕二、"位相共役鏡を用いた高出力高品位バナデートレーザー"、レーザー研究、**36** No. 5 (2008) 289-293.

4) T. Omatsu, A. Minassian, M.J. Damzen, "Passive Q-switching of a diode-side-pumped Nd doped mixed gadolinium yttrium vanadate bounce laser", *Appl. Phys. B* **90** No.3-4 (2008) 445-449.

5) K. Nawata, M. Okida, K. Furuki, T. Omatsu, "MW ps pulse generation at sub-MHz repetition rates from a phase conjugate Nd:YVO<sub>4</sub> bounce amplifier", *Optics Express*, **15**, No. 15 (2007) 9123-9128.

6) K. Nawata, Y. Ojima, M. Okida, T. Ogawa, T. Omatsu, "Power scaling of a pico-second Nd:YVO<sub>4</sub> master-oscillator power amplifier with a phase-conjugate mirror", *Optics Express* **14**, No. 22 (2006) 10657-10662.

7) T. Omatsu, M. Okida, A. Minassian, M.J. Damzen, "High repetition rate Q-switching performance in transversely diode-pumped Nd doped mixed gadolinium yttrium vanadate bounce laser", *Optics Express* **14** No.7 (2006) 2727-2734.

[学会発表] (計 14 件)

1) 中條恵介、渡邊博文、尾松孝茂、"Eu 希土類錯体の飽和吸収による前置縮退四光波混合"、第 56 回応用物理学関係連合講演会(筑波

大学、2009/4/1)1a-ZX-10/ III

2) 渡辺博文、興雄司、尾松孝茂、”ランダム活性材料による高強度有機導波路レーザーを用いた近紫外光発生”，レーザー学会学術講演会第 29 回年次大会(徳島大学、2009/1/10)

3) 渡辺博文、興雄司、秋根茂久、尾松孝茂、”ピコ秒パルス励起分布帰還型有機導波路ブルーレーザー”，レーザー学会学術講演会第 29 回年次大会(徳島大学、2009/1/10)

4) 尾松孝茂、”100W 級高出力ピコ秒位相共役レーザーシステム”，レーザー学会学術講演会第 29 回年次大会(徳島大学、2009/1/12)(招待講演)

5) 尾松孝茂、”レーザーディスプレイ用固体レーザー” 第 1 回レーザーディスプレイ研究会 (東京大学生産技術研究所・コンベンションホール、2008/7/14)(招待講演)

6) 尾松孝茂、”高速繰り返し高出力ピコ秒パナドートレーザの開発とその最新動向”、多元技術融合光プロセス研究会第 1 回研究交流会(アルカディア市ヶ谷、2008/7/8)(招待講演)

7) 尾松孝茂、”サブ MHz 繰り返し高強度コンパクトピコ秒パルスレーザーとその加工応用” 第 70 回レーザー加工学会講演会 (大阪大学コンベンションセンター、2008/5/28)(招待講演)

8) K. Nawata, N. Shiba, M. Okida, T. Omatsu, ”11 MW pico-second pulses with >70 W average power from a phase-conjugate Nd:YVO<sub>4</sub> bounce laser system”, CLEO 2008 (San Jose, 4-9 May 2008) CFB5

9) N. Shiba, K. Nawata, K. Furuki, Kenji, T. Omatsu, ”0.35 MW Pulses with 44 W Average Power from a Picosecond Phase-Conjugate Nd:GdVO<sub>4</sub> Laser System”, Advanced Solid-State Photonics (ASSP) 2008 paper: MC5

10) T. Omatsu, K. Nawata, K. Kuroda, A. Minassian, M.J. Damzen, ”High Power Pico-Second Output from a Diode-Pumped Nd:YVO<sub>4</sub> Phase Conjugate Laser”, Controlling Light with Light Topical Meeting (PR2007) (California, USA, 14 – 16 Oct., 2007) TuB4

11) K. Nawata, T. Omatsu, ”Mega-Watt Pulse Generation from a Pico-second Nd:YVO<sub>4</sub> Phase Conjugate Laser System”, CLEO Pacific-Rim 2007, (Seoul, Korea, 26-31 Aug. 2007) MA2\_5

12) T. Omatsu, ”High power pico-second phase

conjugate Nd:YVO<sub>4</sub> laser”, SBS and Phase Conjugation workshop 2007 (Potsdam, Germany, 25-28 Sept. 2007)(招待講演)

13) T. Omatsu, K. Nawata, ”Ultra-fast phase conjugate laser system”, CLEO-Europe 2007 (Munich, 17-22 June 2007) CC3\_5(招待講演)

14) 尾松孝茂、”位相共役鏡を用いた高品位高出力超短パルスレーザー”、レーザー学会学術講演会第 27 回年次大会 (宮崎市フェニックスシーガイアリゾート、2007 1/18-19)(招待講演)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 3 件)

1) “レーザー加工方法”、特願2009-79680、尾松孝茂、森田隆二、丹田 聡、2009.3.27.

2) “光増幅器及びそれを用いた光増幅システム”、特願2008-141704、尾松孝茂、2008.5.29

3) “レーザー増幅器、レーザー発振器、レーザー増幅方法およびレーザー発振方法”、特願2007-136864、尾松孝茂、2007.5.23.

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

「新聞発表」

1)2008.1.7 化学工業日報 100 ワットピコ秒パルスレーザー開発へ

2)2006/7/11 位相共役鏡を用いた小型ピコ秒パルスレーザー アルネアラボラトリーとの共同開発が日刊工業新聞に掲載

「解説記事」

1) 尾松孝茂、”位相共役光学を用いた高出力ピコ秒レーザーのコヒーレンス制御”、応用物理 78 No.3 (2009) 242-247.

6. 研究組織

(1)研究代表者

尾松孝茂 (TAKASHIGE OMATSU) 千葉大学・大学院融合科学研究科・教授・30241938

(2)研究分担者

渡辺博文 (HIROFUMI WATANABE) 九州大学・大学院システム情報科学研究科・助教・303 63386

(3)連携研究者

なし