Tm³⁺:YLF レーザー励起 Cr²⁺:ZnSe レーザーの開発

2133069 多田 涼太郎 主任指導教員:戸倉川 正樹 准教授 指導教員:白川 晃 教授

1. はじめに

Cr²⁺:ZnSe[1]は、波長 1.9-3.4 µm に広帯域な蛍光スペク トルを有し、室温で高効率・低発振閾値のレーザー動作 が可能であり、機械的安定性にも優れたレーザー媒質で ある。また 1.5-2.1 µm に吸収を有し、Tm³⁺や Ho³⁺レーザ ーといった汎用的なレーザーでの励起が可能である。ま た Cr²⁺:ZnSe レーザーを励起光源とし ZnGeP2(ZGP)結晶 を用いた光パラメトリック発振[2][3]により、分子の指紋 領域[4]が存在する 2-10 µm へ変換することもでき、その 中赤外光を用いた医療応用[5]や環境計測[6]、分光計測 [4]、加工応用などが注目を集めている。これら応用にお いて高エネルギー(µJ~mJ)で短パルス(~ns)な Cr2+:ZnSe レーザーが求められている。 我々の研究室では、Q スイ ッチ法 [7] を用いたパルス幅~ns の Tm³⁺レーザーの開 発を行ってきたが、Tm³⁺添加媒質(蛍光寿命~10 ms)と比 ベ Cr²⁺:ZnSe は蛍光寿命が 6 us と小さく、O スイッチ法 では高エネルギーな短パルス光は得難い。

本研究では、励起光源にQスイッチTmレーザーを用いた、パルスエネルギー~mJかつパルス幅~nsの利得スイッチ Cr²⁺:ZnSe レーザーの開発を目指し、前段階の実験として将来的なQスイッチ発振を考慮した共振器設計のもと、連続発振Tm³⁺:YLF、Tm³⁺:YAP レーザー、およびそれを用いた連続発振 Cr²⁺:ZnSe レーザーの開発を行ったのでその結果を報告する。

2. 原理

2.1. Tm³⁺:YLF, Tm³⁺:YAP 利得媒質の特徴

 Tm^{3+} レーザーは波長 2 µm 帯で動作可能であり、その大 きな利点として、高出力な波長 0.8 µm 帯 LD を用いて直 接励起可能であることが挙げられる。 図1に Tm^{3+} イオ ンのエネルギー準位図を示す。0.8 µm 帯のレーザーによ って $^{3}H_{6}$ から $^{3}H_{4}$ に励起された後、 $^{3}F_{4}$ に非放射緩和す る際に、隣接する Tm^{3+} イオンヘエネルギーが譲渡される ことで基底準位にあるイオンが $^{3}F_{4}$ に励起される。



図1.Tm³⁺のエネルギー準位図

このクロス緩和と呼ばれる励起過程により、1 つの光子 の吸収で2つのイオンが励起され、量子効率が2に迫る 動作が可能である。また理論限界の効率についても80% と非常に高い値が得られる。

 Tm^{3+} :YLF(yttrium lithium fluoride)は、化学式 LiYF4 で表 される一軸性結晶であり、c 軸に対して並行な π 偏光お よび垂直な σ 偏光が存在する。表 1 に Tm^{3+} 添加媒質の物 性を示す。表 1 に示すように Tm^{3+} :YLF は屈折率が小さ く、熱光学定数が負で、その絶対値も小さい値を示すこ とから、熱レンズ効果を抑制し、高出力なレーザー動作 に適している。また蛍光寿命についても他のホスト材料 と比べ長いため、上準位に反転分布をある程度蓄える必 要のある Q スイッチ発振などの動作に適している。さら に 1.8-2.0 μ m に広がる蛍光スペクトルを有し、後述する Cr²⁺:ZnSe の励起光源として利用可能である。

 Tm^{3+} :YAP(yttrium aluminum perovskite)は、化学式 YAlO3 で表され、ペロブスカイト構造を持つ二軸性結晶であり、 結晶軸として a 軸、b 軸、c 軸が存在する[9]。表1 に示 すように Tm^{3+} :YAP は熱伝導率に優れ、また 1.7-2.0 μ m に広がる蛍光スペクトルを有し Tm^{3+} :YLF 同様、 Cr²⁺:ZnSe の励起光源として利用可能である。

表1.Tm³⁺添加媒質の物性 [8][9][10][11][12][13][14]

母材	屈折率	発振波長	熱伝導率	熱光学定数	蛍光寿命
		[µm]	[Wm ⁻¹ K ⁻¹]	[10 ⁻⁶ K ⁻¹]	[ms]
YLF	~1.44	1.8-2.0	5.3lla 7.2llc	-4.6lla, -6.6llc	14
YAP	~1.92	1.9-2.0	14	8.5lla, 8.1llb, 12.8 llc	5
YAG	~1.81	2.0-2.1	10~14	9	10
Lu ₂ O ₃	~1.90	2.0-2.1	12.8	9.1	4

2.2. Cr²⁺:ZnSe 利得媒質の特徴

Cr²⁺:ZnS/ZnSe は、広帯域な蛍光スペクトルや優れた機械的安定性などから「中赤外のTi:Sapphire」とも呼ばれている。図2にCr²⁺:ZnSe の吸収(黒実線)および誘導放出断面積を示す(赤実線)[1]。Cr²⁺:ZnSe は、1.8-3.4 µm に広がる大きな誘導放出断面積を有し、また1.5-2.1 µm に広帯域な吸収を有することから、Er³⁺レーザーや先述したTm³⁺レーザーを励起光源としたモード同期レーザーによって数サイクルの超短パルス発生が可能である。しかし表1に示すとおりTm³⁺添加媒質などと比較し、蛍光寿命が6µsと非常に短いため、Qスイッチ法ではエネルギーを貯めにくく、高エネルギー(µJ~mJ)で短パルス(~ns)なレーザーは得難い。



図 2. Cr²⁺:ZnSe の吸収および誘導放出断面積[10]

2.3. Qスイッチ法と利得スイッチ法

Q スイッチ法[7]とは、光共振器の Q 値を急激に変動 させることでパルス光を得る手法である。図 3(a)に示さ れるように Q スイッチ法では、まず初めに共振器の損失 を大きい状態(AB 区間)にし、非発振状態で反転分布を大 きくする。その後共振器の損失を小さくすることで(BC 区間)、蓄えたエネルギーを短時間に放出させる(CD 区 間)。このような動作によって高エネルギーな短パルス光 を得ることができる[15]。しかし前述の Cr²⁺:ZnSe のよう に蛍光寿命が短い利得媒質でエネルギーが貯め難く得 られるパルス光を制限してしまう。

これに対し利得スイッチ法とは、図3(b)に示すように 利得媒質をQスイッチ法などで得られたパルスレーザ ーで励起することで、短時間で反転分布量の急激な変化 を生み出し、短パルス光を得る方法である。Qスイッチ 法に比べ、蛍光寿命が短い利得媒質においても高エネル ギーな短パルス光を得ることができる。



図 3. パルス発生法 (a)Q スイッチ法 (b)利得スイッチ法

本研究では、励起光源に Q スイッチ Tm³⁺レーザーを 用いた、利得スイッチ Cr²⁺:ZnSe レーザーの高パルスエ ネルギー(~mJ)かつ短パルス動作(~ns)を目的とした。

2.4. ガウシアンビームの伝搬

ガウシアンビームとは、断面の強度分布がガウス関数 で表せるものを指す[16]。光の進行方向をz軸とおいたと き、進行方向と垂直なxy平面における光の強度分布 I(x,y)は、定数 ω を用いて

$$I(x,y) \propto e^{-\frac{2(x^2+y^2)}{\omega^2}} = e^{-\frac{2\rho^2}{\omega^2}}, \qquad \rho^2 = x^2 + y^2 \quad (1)$$

と表せる。この ω をビーム半径、 2ω をビーム径と定義し、 スポットサイズと呼ぶ。伝搬距離zに対するビーム半径 $\omega(z)$ および曲率半径R(z)は

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2 n}\right)^2}$$
(2)

$$R(z) = z \sqrt{1 + \left(\frac{\pi \omega_0^2 n}{\lambda z}\right)^2}$$
(3)

と表せる。ここで λ は波長、nは屈折率、 ω_0 はビームウエ ストでのスポットサイズである。なおビームウエストと は、ビーム径が最小値をとる位置(z = 0)を表す。また、 ビームウエストのスポットサイズが $\sqrt{2}$ 倍、すなわち $\omega(z_0) = \sqrt{2}\omega_0$ を満たす z_0 をレイリー長と呼び、 $z_0 = \frac{\pi\omega_0^2 n}{\lambda_z}$ で表せる。

2.5. ビーム品質(M²)

ビーム品質(*M*²)とは、実際のビームがガウス分布、 TEM₀₀ からどの程度離れているかを示す数値である[17]。 *M*²は式(4)で定義される。

$$M^2 = \frac{n\pi}{2\lambda}\omega_0\theta \tag{4}$$

シータは広がり角を示す。ファイバーのM²は、開口数 (NA)およびコア径aを用いて

$$M^{2} = \frac{n\pi}{2\lambda} \tan(\sin^{-1} NA) \approx \frac{n\pi(NA)}{2\lambda}$$
(5)

と表せる。またM²を用いると高次横モードを含むレー ザー光は、M倍のガウシアンビームとしてビーム伝搬を 記述できる。つまり、式(2)はM²を用いて

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{M^2 \lambda z}{\pi \omega_0^2 n}\right)^2}$$
(6)

と表すことができる。

2.6. スロープ効率と共振器内損失

レーザーの吸収励起パワーに対する出力パワーの割 合を示すスロープ効率 η_{slope} は、励起量子効率 η_{stokes} 、励 起吸収パワー η_{abs} 、原子量子効率 $\eta_{quantum}$ 、モードマッ チング効率 η_{mode} 、および出力鏡や結合鏡の透過率によ る損失T、共振器内部での散乱や開設などに基づく残留 損失 L_i を用いて $\eta_{slope} = \eta_{stokes} \cdot \eta_{abs} \cdot \eta_{quantum} \cdot \eta_{mode} \cdot \frac{T}{T + L_i}$ (7)

と表せる[18][19]。このとき左辺の全ての効率η < 1なの で、式(7)は限界スロープ効率η₀を用いて

$$\eta_{slope} = \eta_0 \cdot \frac{T}{T + L_i} \tag{8}$$

と表せる。またこの式(8)を変形して

$$\frac{1}{\eta_{slope}} = \frac{L_i}{\eta_0} \cdot \frac{1}{T} + \frac{1}{\eta_0} \tag{9}$$

式(9)より、x軸に1/T、y軸に $1/\eta_{slope}$ を取ることで、傾きとy切片から共振器内の損失を見積もることができる。

3. Tm³⁺レーザー実験

3.1 Tm³⁺:YLF レーザー実験構成

はじめに Tm³⁺:YLF レーザーの発振実験を行った。図4 に Tm³⁺:YLF レーザー実験構成を示す。共振器は 3 枚の ミラーで構成される L 字型の共振器である。励起光源に は波長 793 nm ファイバー結合 LD(最大出力:30 W、 NA:0.22、コア径:105 μ m)を使用した。励起光の集光レン ズ系には焦点距離が 50 nm と 200 nm の球面レンズ、 M1 は曲率半径 200 nm の凹面鏡を使用し、励起光と共 振器内レーザー光が利得媒質中でそれぞれ半径が 210 μ m、250 μ m となるように設計した。このときの共振器 内ビーム半径を図 5 に示す。利得媒質は結晶長が 8 nm と 20 nm の 2 種類の Tm³⁺:YLF(c-cut、3 at.%添加、AR コ ート)を使用し、励起光に対して垂直に配置した。出力鏡 (OC)は、透過率が 1.5%、5%、10%、20%、30%の 5 種類 を用いて実験を行った。



3.2 Tm³⁺:YLF レーザー実験結果

図6に2種類のTm³⁺:YLF レーザーの出力特性とスペ クトルを示す。

結晶長 8 mm の Tm³⁺:YLF について、出力鏡の透過率が 1.5%、5%、10%、20%、30%のとき、中心波長はそれぞ れ 1932 nm、1910 nm、1908 nm、1886 nm、1880 nm、最 大出力はそれぞれ 5.78 W、6.60 W、6.73 W、5.17 W、4.14 W を得た。また、スロープ効率はそれぞれ 20%、24%、 24%、21%、19%を得た。



結晶長 20 mm の Tm³⁺:YLF についての同様に、中心波 長はそれぞれ 1937 nm、1930 nm、1925 nm、1909 nm、 1908 nm、最大出力はそれぞれ 3.7 W、6.3 W、7.7 W、6.0 W、5.7 W を得た。また、スロープ効率はそれぞれ 16%、 29%、33%、31%、31%を得た。



どちらの利得媒質もスロープ効率から、出力鏡の透過 率10%のときが最適であると考えられる。また中心波長 について、図6(c)と図6(d)を比較すると、結晶長20mm のTm³⁺:YLFの方が全体的に長波長側にシフトしている ことが分かる。これは結晶長が長く、再吸収の影響が大 きくなることで反転分布量が小さくなり、長波長側で発 振が起きていると考えられる。

3.3 Tm³⁺:YAP レーザー実験構成

次に Tm³⁺:YAP レーザーの発振実験を行った。共振器 の構成は図4のTm³⁺:YLF レーザー実験時と同様であり、 励起光と共振器内レーザー光が利得媒質中でそれぞれ 半径 210 μm、250 μm となるように設計した。このとき の共振器内ビーム半径を図 7 に示す。利得媒質は Tm³⁺:YAP(結晶長 12 mm、c-cut、4at.%添加、AR コート) を使用し、励起光に対して垂直に配置した。出力鏡は、 透過率が 1.5%、5%、10%の3 種類を用いて実験を行っ た。



3.4 Tm³⁺:YAP レーザー実験結果

図8にTm³⁺:YAP レーザーの出力特性とスペクトルを 示す。出力鏡の透過率が1.5%、5%、10%のとき、中心波 長はそれぞれ1992 nm、1984 nm、1940 nm、最大出力は それぞれ0.81 W、1.2 W、0.66 W を得た。また、スロー プ効率はそれぞれ19%、25%、17%を得た。

また実験途中結晶の端面を確認したところ、亀裂が確認された。これは励起による熱の影響や、ホルダーによる結晶への圧による影響の可能性が考えられる。



(a)出力特性,(b)スペクトル

3.5 Q-switcher 挿入用 Tm³⁺YLF レーザー実験構成

将来的なQスイッチ発振に向けてQ-switcherの挿入を 考慮した共振器を設計した。図9に実験構成を示す。共 振器構成は、 Tm^{3+} :YLF、 Tm^{3+} :YAP レーザー実験時とほ ぼ同様であるが、将来的なQスイッチ発振に向けてM1 を曲率半径 300 mm の凹面鏡に変更し、Q-switcher 挿入 の空間を設けた。利得媒質付近のレーザー光のビーム半 径は約 315 μ m であり、それに伴い励起光の集光レンズ 系も 50 mm と 300 mm の球面レンズに変更し、励起光を 利得媒質中で約 315 μ m に集光した。このときの共振器



図 9. Q-switcher 挿入用 Tm³⁺:YLF レーザー実験構成

内ビーム半径を図 10 に示す。また Q-switcher の端面の 光強度は、200 MW/cm² と計算され、これは Q-switcher の 破壊閾値 500 MW/cm² のよりも小さい値としている。利 得媒質は、前述の Tm³⁺:YLF レーザー、Tm³⁺:YAP レーザ ーの実験結果およびレイリー長を考慮し、結晶長が 20mm の Tm³⁺:YLF のみを使用した。出力鏡は、透過率 が 1.5%、5%、10%、20%、30%の5 種類を用いて実験を 行った。



3.6 Q-switcher 挿入用 Tm³⁺YLF レーザー実験結果

図 11 に Q-switcher 挿入用 Tm³⁺:YLF レーザーの出力特 性とスペクトルを示す。出力鏡の透過率が 1.5%、5%、 10%、20%、30%のとき、中心波長はそれぞれ 1942 nm、 1933 nm、1926 nm、1911 nm、1909 nm、最大出力はそれ ぞれ 3.83 W、4.45 W、5.15 W、3.86 W、3.05 W を得た。 また、スロープ効率はそれぞれ 16%、22%、28%、25%、 24%を得た。こちらも出力鏡の透過率 10%のときが最適 であると考えられる。また、前述した Tm³⁺:YLF レーザ 一実験結果と比べて発振閾値の上昇が確認された。これ は利得媒質での励起光の集光径が大きくなり、単位面積 あたりの励起光強度が小さくなったためだと考えられ る。



次に、結晶長 20 mm の Tm³⁺:YLF における Tm³⁺:YLF レーザー実験系および Q-switcher 挿入用 Tm³⁺:YLF レー ザー実験系の共振器内の損失を、式(6)を用いて計算した。 結果を図 12 に示す。ここで反転分布量の変化の割合が 大きい透過率 20%、30%はフィッティングから除いた。



共振器内の損失は Tm³⁺:YLF レーザーおよび Q-switcher 挿入用 Tm³⁺:YLF レーザー実験系でそれぞれ 2%、1%とな った。前者と比較して後者の方が損失が小さい理由としては、 集光レンズ系を変更したことで、後者の方がレイリー長が長く なり、利得媒質内の散乱損失が減少したためだと考えられる。

4. Cr²⁺:ZnSe レーザー実験

4.1 実験構成

開発した Q-switcher 挿入用 Tm³⁺:YLF レーザーを励起 光源に用いて Cr²⁺:ZnSe レーザーの発振実験を行った。 図 13 に Cr²⁺:ZnSe レーザー実験構成を示す。共振器は L 字型の共振器であり、励起光の集光レンズ系は 200 mm と 150 mm の球面レンズ、M1 は曲率半径 200 mm の凹面 鏡を使用し、励起光と共振器内レーザー光が利得媒質中 でそれぞれ半径 200 μ m、250 μ m となるように設計した。 このときの共振器内ビーム半径を図 14 に示す。利得媒 質は Cr²⁺:ZnSe(Cr²⁺添加濃度 8.0×10¹⁸ cm⁻³、長さ 5 mm、 AR コート)を使用し、励起光に対して垂直に配置した。 出力鏡は、透過率が 10%のものを用いて実験を行った。



4.2 実験結果

図 15 に Cr²⁺:ZnSe レーザーの出力特性とスペクトルを 示す。



スロープ効率 15%、最大出力 240 mW(@1.8 W)、中心 波長 2443 nm で発振を確認した。しかし、出力において ±20%かつ数秒単位で揺れており、またスペクトルも測 定毎でスペクトル強度の揺れが確認された。図 16(a)に Cr²⁺:ZnSe レーザーの時間波形、図 16(b)にそれを拡大し たものを示す。



Cr²⁺:ZnSe レーザーにおいてパルシングが確認され、また1つのパルスを拡大すると大きさの違うパルス列が確認された。パルス出射間隔は約200 µs、パルス幅は50 nsであった。次に励起光源である Tm³⁺:YLF レーザーの時間波形を測定した。測定結果を図17 に示す。





図 17 に示すように、Tm³⁺:YLF レーザーにおいてもセ ルフパルシングが確認された。以下これらの現象につい て考察する。

Cr²⁺:ZnSe レーザーのパルシングについて、Tm³⁺:YLF レーザーのセルフパルシングによる、Cr²⁺:ZnSe レーザーの疑似的な利得スイッチ発振が生じたと考えられる。ま

た図 5 に示すように Tm³⁺:YLF レーザーのパルスの強度 に大小が存在していたため、励起された Cr²⁺:ZnSe レー ザーの出力が不安定であった可能性がある。

ここで、各レーザーのパルス出射間隔の違いは、 Tm³⁺:YLF レーザーのパルスのピークパワーが小さい場 合に Cr²⁺:ZnSe が発振できなかったことが原因であると 考えられる。

6. まとめと展望

本研究では ZGP 結晶を用いた、OPO による 2-10 μ m の中赤外光発生に向け、ZGP 励起用 Cr²⁺:ZnSe レーザー の開発を目指した。またそのための励起用光源として Tm³⁺:YLF レーザーおよび Tm³⁺:YAP レーザーの開発を 行い、出力特性を評価した。次に共振器を変更し、将来 的な Q スイッチ発振に向け、Q-switcher の挿入を考慮し た Tm³⁺:YLF レーザーを開発し、それを励起光源とした Cr²⁺:ZnSe レーザーの開発を行った。

Tm³⁺:YLF レーザー実験において、結晶長 8 mm で ccut の Tm³⁺:YLF では、出力鏡の透過率 10%のとき、最大 出力 6.7 W(@30 W)、最大スロープ効率 24%、中心波長 1908 nm での発振を確認した。同様に結晶長 20 mm では、 透過率 10%のとき、最大出力 7.7 W(@29 W)、最大スロ ープ効率 33%、中心波長 1925 nm での発振を確認した。

また同じ共振器構成で結晶長 12 mm の c-cut の Tm³⁺:YAP レーザー実験においては、出力鏡の透過率10% のとき、最大出力 1.2 W(@12 W)、最大スロープ効率 25%、 中心波長 1984 nm での発振を確認した。

次に、結晶長 20 mm の Tm³⁺:YLF を用いた Q-switcher 挿入用 Tm³⁺:YLF レーザー実験では、出力鏡の透過率 10%のとき、最大出力 5.2 W(@28 W)、最大スロープ効率 28%、中心波長 1926 nm での発振を確認した。

さらに、この Q-switcher 挿入用 Tm³⁺:YLF レーザーを 励起光源として用いた Cr²⁺:ZnSe レーザー実験では、出 力鏡の透過率 10%のとき、最大出力 240 mW(@1.8 W)、 スロープ効率 15%、中心波長 2443 nm での発振を確認し たが、出力、スペクトルともに不安定であった。Cr²⁺:ZnSe レーザーおよび、励起光源である Tm³⁺:YLF レーザーの 時間波形について測定すると、ともにパルシングが生じ ていることがわかった。今後の展望としては、Tm³⁺:YLF レーザーに Q-switcher を挿入し、パルスを制御すること で、パルスエネルギーが~mJ の安定した利得スイッチ Cr²⁺:ZnSe レーザーの開発に繋がると考えている。

参考文献

- [1] S.Vasilyev et.al., Opt.Express 7, 2636-2650 (2017).
- [2] I.T.McKinnie et.al., Conference on lasers and electro-optics. (2002).
- [3] K.L.Vodopyanov et.al., Opt.Lett. 25, 841-843 (2000).
- [4] A.Schliesser et.al., Nature photonics 6, 440-449 (2012).
- [5] S.Golovynskyi et.al., Journal of Biophotonics 11, e201800141 (2018).
- [6] J.P.Cariou et.al. Comptes Rendus Physique 7, 213-223 (2006).
- [7] Q.Berthome et.al., Opt.Express 28, 5013 (2020).
- [8] S.Payne et.al., IEEE Journal of Quantum Electronics 28, 2619-2630 (1992).
- [9] C.Krankel et.al., IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 21, 250-262 (2015).
- [10] G.Li et.al., Appl.Opt. 53, 4987-4996 (2014).
- [11] C.D.Phelps, University of Dayton (2011).
- [12] H.Zhang et.al., Applied Physics A 127, 1-8 (2021).
- [13] B.Zhang et.al., Optics Laser Technology 100, 103-108 (2018).
- [14] G.Qin et.al., Solid State Commnications 132, 103-106 (2004).
- [15] 矢津田匠海, 電気通信大学 修士論文 (2022).
- [16] 三沢和彦, 芦原聡, "工学系のためのレーザー物理入門 講談社 (2020).
- [17] 平等拓範, レーザー研究 26,723-729 (1998).
- [18] 小林喬郎,"固体レーザー", 学会出版センター (1997).
- [19] J.Caird et.al., IEEE Journal of Quantum Electronics 24, 1077-1099 (1998).