Q スイッチ Tm:YLF レーザーの開発

戸倉川研究室 内山達士

1. はじめに

波長 1.9~3.4 μm と広帯域な蛍光スペクトルを有している Cr^{2+}:ZnSe は, 2-3 μm 中赤外領域で直接レーザー発振可能であり, 室温動作可能, 低発振閾値, 機械的安定性に優れている. また 1.5~2 μm に吸収を有していることから, Tm^{3+}や Er^{3+}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. さらに Cr^{2+}:ZnSe は $ZnGeP_2$(ZGP)結晶を用いた光パラメトリック発振(Optical Parametric Oscillator: OPO)などにより, 4~10 μm への非線形波長変換が行いやすい. この波長域は, 分子の指紋領域と呼ばれ, 生体顕微鏡などの医療応用の他, 環境計測, 中赤外分光等, 様々な応用分野での展開が期待されている. このような応用に向けて, 高エネルギーかつ短パルスなレーザーが求められており, そのようなレーザーを得る手法の 1 つとして Q スイッチ法がある. 我々の研究室では, Q スイッチ法を用いてパルス幅が~ns の Tm^{3+}レーザーの開発を行ってきたが, Tm^{3+} 添加の利得媒質と比較し Cr^{2+}:ZnSe は蛍光寿命が 6 μm と短く, Q スイッチ法では求めるパルス化が困難である. そこで本研究では, 利得スイッチ法による, ~mJ かつ~ns の Cr^{2+}:ZnSe レーザーの開発を目指し, その励起光源として Q スイッチ Tm^{3+}:YLF レーザーの開発を目指した.

2. Tm^{3+}: YLF利得媒質の特徴

2.1 エネルギー準位

Tm^{3+}のエネルギー準位図を以下に示す. (a)では, 0.8 μm 帯の LD を用いて $^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$ へイオンを励起したのち, $^3F_4$ へ非飽和緩和される際に, 隣接する Tm^{3+}に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 $^3F_4$ へと励起される. このクロス緩和と呼ばれる励起過程により 1 つの光子で 2 つの光子を励起することができる. これにより量子効率が 2 に近づき, ストークス効率も 80%と高効率な動作が可能になる. (b)は in-band 励起と呼ばれ, 波長 1.6 μm で $^3H_6 \rightarrow {}^3F_4$ に直接励起する. これにより量子欠損の少ない高効率な動作が可能になる. しかし, 市販されているものでは高出力な光源が少なく, 高出力化には大型の装置を必要としてしまう. そこで本研究では前者を採用し, 波長 0.8 μm 帯の高出力は LD を用いてを Tm^{3+}:YLF 励起し, 高出力で高効率はレーザー動作を目指した.

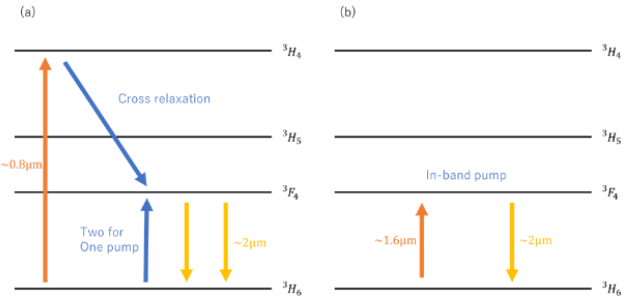


図 1 Tm^{3+}のエネルギー準位の励起過程

2.2 吸収スペクトル

Tm^{3+}:YLF(yttrium lithium fluoride) は, 化学式 $LiYF_4$ の一軸性結晶であり, c 軸に並行な π 偏光および垂直な σ 偏光が存在する. これにより結晶のカットの方法が 2 種類存在し, c 軸に並行にカットする a-cut, 垂直にカットする c-cut がある.

以下に Tm^{3+}:YLF の, 0.8 μm 帯と 1.6 μm 帯での各偏光の吸収断面積を示す.[1] 0.8 μm 帯の各偏光の吸収断面積を比較すると, ピーク波長付近で吸収断面積の変化が σ 偏光(c-cut)のほうが小さいことがわかる. そこで本研究では, LD の熱による長シフトの影響を考慮し, c-cut の Tm^{3+}:YLF を使用し実験を行った.

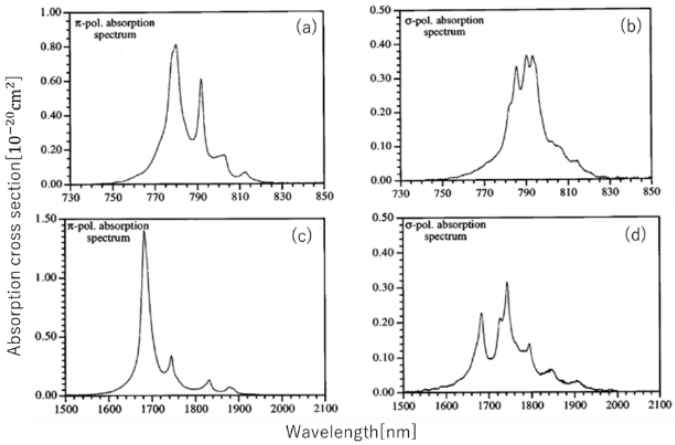


図 2 Tm^{3+}:YLF の吸収断面積[1]
0.8 μm 帯(a)π 偏光(b)σ 偏光, 1.6 μm 帯(c)π 偏光(d)σ 偏光

2.3 誘導放出断面積

以下に Tm^{3+}:YLF の 1.6 μm 帯での各偏光の誘導放出断面積を示す.[1]

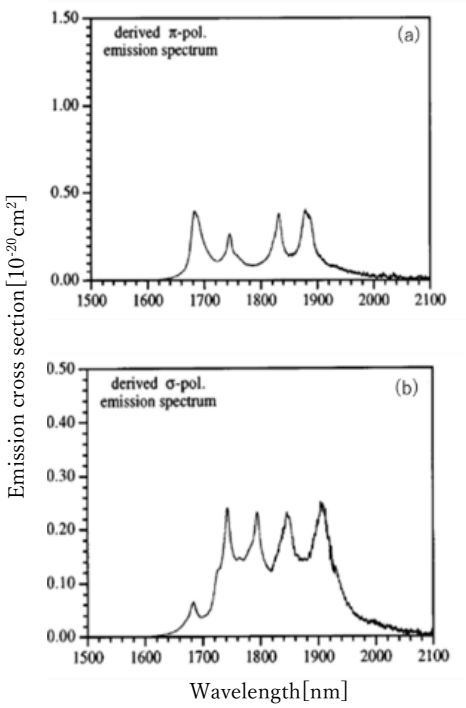


図 2.3 Tm^{3+}:YLF の誘導放出断面積[1]
((a)π 偏光(b)σ 偏光)

1 軸性結晶である Tm^{3+}:YLF は吸収と同様に π および σ 偏光の 2 つの発振線が存在し，それぞれピーク波長は π 偏光で 1.880 μm, σ 偏光で 1.907 μm である．また，1 軸性結晶である Tm^{3+}:YLF の発振波長は 1.8~2.0 μm である．

2.4 熱機械特性

ページ下部の表 1 に 1 軸性結晶である Tm^{3+}:YLF と他の 1 軸性結晶である Tm^{3+}添加媒質の熱機械特性を示す．Tm^{3+}:YLF は屈折率が小さく，熱光学定数の絶対値が他の媒質と比較して小さいため，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．また上準位寿命についても他の媒質より比較的長いため，反転分布量をある程度蓄える必要のある Q スイッチ発振の動作に適している．さらに，Tm^{3+}:YLF は，Tm^{3+}:YAG と比較しフォノンエネルギーが小さく，励起準位のフォノン緩和が小さくなり高い確率での発光が得られるため，高効率なレーザー動作が可能である．

3. 発振実験

3.1 実験構成

図 3 に本研究室での先行研究の実験構成を示す．この系は AOM を組み込むことが想定されていたが，実際には上図の 90 mm の間に素子は入らず，

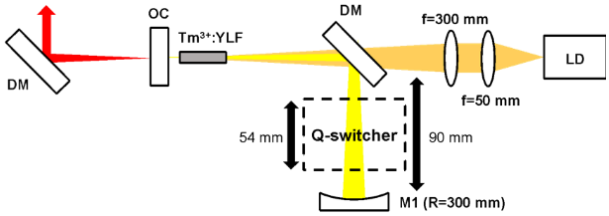


図 3 Tm^{3+}:YLF レーザー実験構成(先行研究)[2]

共振器長を長くする必要があった．また系が不安定であり，度々レーザー発振しなくなる問題があった．これは集光レンズの f が大きいことにより，レンズと LD 出射口の距離が離れ，少しのズレでも大きく集光点がずれてしまうことと，以下の図 3(上)のような長いロッドを用いたケージシステムにより，ロッドに負荷がかかりやすく，歪を生んでしまっていたことによるのではないか，と考えた．これらを改善し，系を頑強にするため以下図 3(下)に示すようにレンズ，ミラーを変更し，ケージシステムも図 3.3 に示すようにロッドを短いものとした．また LD からの光をコリメートしやすいように LD に近いレンズの *NA* を比較大きなものに変更した．

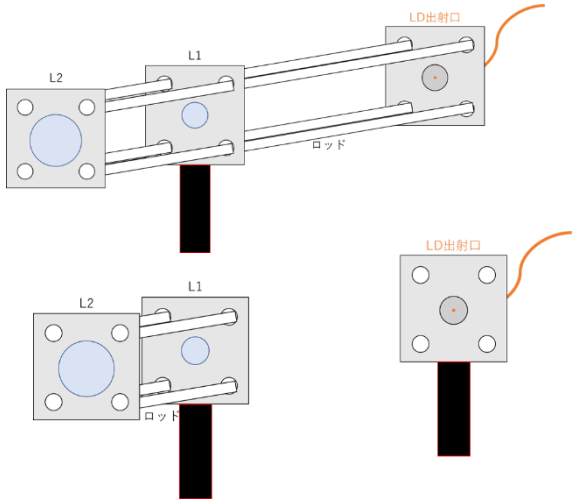


図 3　ケージシステム概要(上)　先行研究、(下)本研究

表 1 Tm^{3+}添加媒質の熱機械特性[3, 4, 5, 6, 7, 8, 9]

利得媒質	屈折率	熱伝導率 [$Wm^{-1}K^{-1}$]	熱光学定数 dn/dT [$10^{-6}K^{-1}$]	上準位寿命 [ms]	フォノンエネルギー [cm^{-1}]
Tm^{3+}:YLF	~1.44	5.3‖a 7.2‖c	-6.6‖a -4.6‖c	14	560
Tm^{3+}:YAP	~1.92	14	8.5‖a 8.1‖b 12.8‖c	5	570
Tm^{3+}:YAG	~1.81	10~14	9	10	850
Tm^{3+}:Lu_2O	~1.90	12.8	9.1	3.7	610

以下に本研究で用いた Tm^{3+}:YLF レーザーの実験構成を示す.

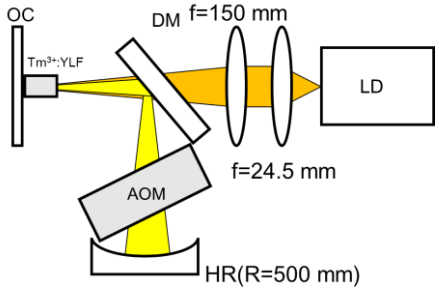


図 4 Tm^{3+}:YLF レーザー実験構成

共振器は 3 枚のミラーで構成される L 字型共振器である. 励起光源には 792 nm ファイバー結合 LD(最大出力:30W, *NA*=0.22, コア径:105 μm, M^2:46)を使用し, 水冷で 18 ℃程度に保った. 励起光の集光レンズ系には焦点距離が 24.5 mm と 150 mm のものを使用し, ダイクロイックミラー(DM)を通して利得媒質中でビーム半径 300 μm に集光した. 自己無撞着法により計算した共振器内のビーム半径を以下図に示す. 利得媒質内での共振器のビーム半径が約 394 μm であった. 利得媒質は AR コーティングされた Tm^{3+}:YLF を使用し, これを銅製のホルダーに入れて 18 ℃に保ち, 励起光に対して垂直に配置した. M1 は曲率半径が 500 mm の凹面鏡で, 出力鏡(OC)は 10%のものを用いて実験を行った.

3.2 実験結果

以下の図に先行研究と, それを改変した本研究の LD 励起パワーと Tm^{3+}:YLF 出力の関係を示し, 表にスロープ効率, 発振閾値を示す.

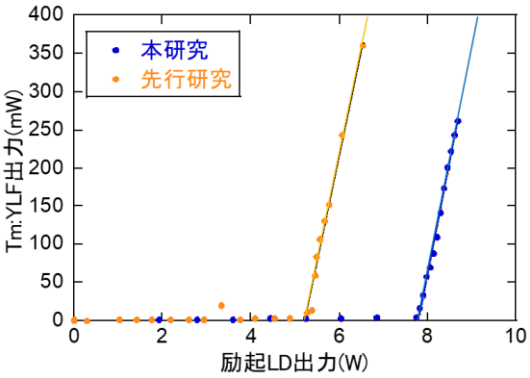


図 5 Tm^{3+}:YLF の出力特性

表 2 Tm^{3+}:YLF 比較

	閾値/W	スロープ効率
先行研究	5.24	27.2%
本研究	7.79	29.7%

上の結果から, 系を変更してから閾値とスロープ効率の両方上がっている. 閾値の上昇については励起光の集光が, 先行研究のビーム半径 210 μm に比べて大きくなっていることによる, フルエンスの低下が原因であると考えられる. スロープ効率にの上昇については, LD に近いレンズの *NA* が高くなったことで励起光源が一部遮られるようなことなく透過されていることが考えられる. また集光レンズ系が大きく変わっていることから, 励起光と発振光のモードマッチが良くなった可能性が考えられるのではないだろうか.

4. Q スイッチ Tm^{3+}:YLF 発振実験

Tm^{3+}:YLF の実験構成は図 4 に示した通りである. 以下に AOM 挿入前と後の出力特性を示す. なお AOM は稼働させていない.

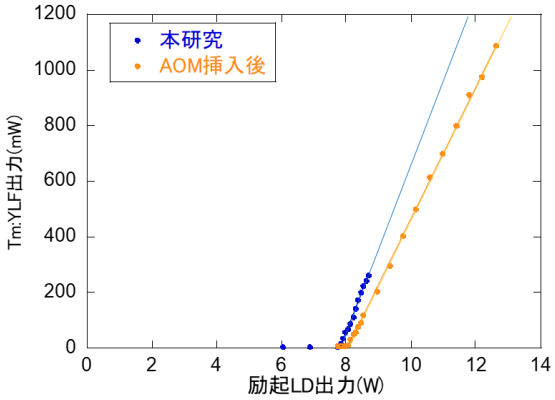
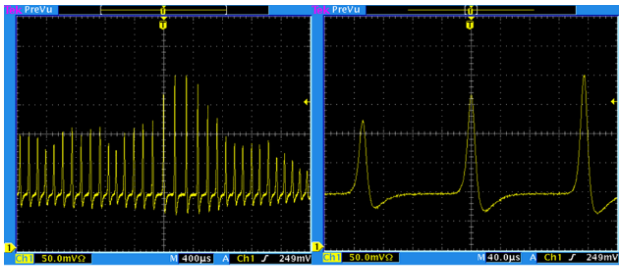


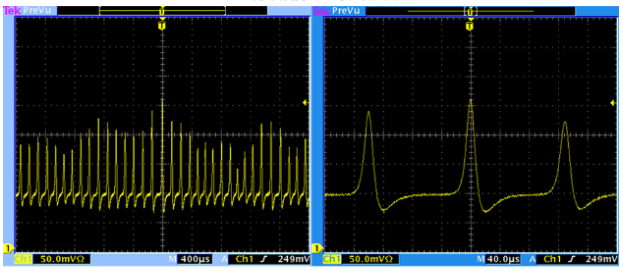
図 5 AOM 挿入前後の Tm^{3+}:YLF 出力特性

上図より, AOM 挿入後の発振閾値は 8.04 W であり, スロープ効率は 22.0%であった. この閾値の上昇とスロープ効率の低下は AOM の挿入によって, 共振器内の損失が大きくなったことに由来するものと考えられる.

次に, AOM を稼働させ, 時間波形を測定した. ドライバーにはファンクションジェネレータから 1 kHz, デューティー比 50%, 1 V の矩形波を入力した.以下に実際に測定した時間波形を示す.



AOM稼働前の時間波形



AOM稼働後の時間波形

図 4.3 AOM 稼働前後の時間波形

上図から AOM を稼働する前からパルシングが確認され, AOM 稼働後は AOM からの変調は確認できない. つまり, Q スイッチ発振は確認できていない. このセルフパルシングは先行研究のときから確認されていた. 間隔は 120~160 μs の間で不安定に揺れ動いており, パルス幅は約 20 μs であった.

以下セルフパルシングと, Q スイッチ発振できてないことに関して考察する. AOM 稼働前の時間波形を見るとパルスの強度が上下していることが見て取れる. これにより緩和発振をしている可能性が考えられる. 先述したように励起光の集光半径が先行研究よりも大きくなっていることから先行研究よりさらに励起密度が小さくなってしまい, セルフパルシングの状態を引き継いだと考えられる. また, 図 2, 3 に示すように Tm^{3+}:YLF の発振帯域と, 吸収帯域に重なりが見て取れる. これによって利得媒質内で再吸収が起こってしまい, 利得媒質が過飽和吸収体として振る舞うことで, パルスの成分が成長してしまっていることが考えられる. これもセルフパルシングの大きな要因の 1 つだと考える. Q スイッチレーザーに関しては, Bragg angle が回折効率に大きく関係していると考えられるが, その大きさが 7 mrad と小さく, 調整が困難であること. また現在の系では Bragg angle 方向の調整機構を AOM が有しておらず, 光軸を傾けることで角度を達成しようとしているが, そうしてしまうと角度を変えると同時に結晶内の光路も変わってしまう. それにより結晶の任意の回折しやすい点から離れてしまう. これによっても回折しやすい点を見つけにくくしてしまっている可能性がある.

5. 結論

本研究では, $ZnGeP_2$(ZGP)結晶を用いた, OPO による 4~10 μm の中赤外光発生に向けた, ZGP 励起用の利得スイッチ Cr^{2+}:ZnSe レーザーの開発を目指した. そのために Cr^{2+}:ZnSe の励起光源として, Tm^{3+}:YLF レーザーの改善, 開発を行い, 先行のものと比較, 評価を行った. 次に共振器内に AOM を挿入し, Q スイッチ発振を目指した.

Tm^{3+}:YLF レーザー実験では, 先行研究の系から, AOM 挿入のために共振器長を伸ばし, また系の安定性のために, 系全体の改善を行い. スロープ効率 29.7%を得ることができ, 系の長期的安定性も得ることができた.

次に実際に系に AOM を組み込み, 発振実験を行ったが, Q スイッチ発振には至らなかった. また, 先行研究から引き続き Tm^{3+}:YLF レーザーがセルフパルシングしていることがわかった. これは励起光の励起密度が低いことと, 利得媒質の発振波長, 吸収波長の特性に由来すると考えられる. また Q スイッチに至らなかった原因としては, Bragg angle の調整やトランスデューサーの位置に関係する光軸の調整ができていないことが挙げられるだろう.

今後の展望としては AOM の正確に回折できるような角度を走査し Q スイッチ Tm^{3+}:YLF レーザーの開発を目指す. 次にそれを励起光源として利得スイッチ Cr^{2+}:ZnSe レーザーを開発し, それを励起光源として OPO による ZGP 結晶を用いた中赤外への波長変換によって, 10 μJ で 4~10 μm の波長可変レーザーの開発に繋げようと考える.

参考文献

1. B. M Walsh, N. P. Barnes, and B. D. Bartolo, “Branching Ratios, Cross Sections, and Radiative Lifetimes of Rare Earth Ions in Solids: Application ot Tm^{3+} and Ho^{3+} lons in $LiYF_4$ ”, Applied Physics 83(5), 2772-2787(1998).
2. 多田涼太郎, Tm^{3+}:YLF レーザー励起 Cr^{2+}:ZnSe レーザーの開発, 2023 年度修士論文
3. S. Payne, L. Chase, L. Smith, Kway, and W. Krupke, “Infrared cross-section measurements for crystals doped with Er^{3+}, Tm^{3+} , and Ho^{3+} ”, IEEE Journal of Quantum Electronics 28, 2619-2630(1992).
4. C. Krȁnkel, “Rare-Earth-Doped Sesquioxides for Diode-Pumped High-Power Lasers in the 1-, 2-, and 3-μm Spectral Range”, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 21, 250-262(2015).
5. G. Li, H. Liu, F. Lu, X. Wen, Y. Gu, and Y. Wang, “Analysis on preferential free running laser wavelength and performance modeling of Tm^{3+}-doped YAP and YLF”, Appl. Opt. 53, 4987-4996(2014).
6. C. D. Phelps, “Diode-pumped, 2μm, Q-Switched Thulium: $Y_3Al_5O_{12}$ Tm:YAP microchip laser”, University of Dayton(2011)
7. H. Zhang, D. Sun, J. Luo, C. Quan, M. Cheng, L. Hu, Z. Han, and K. Dong, “Effect of Tm^{3+} concentration on structure, defect, and spectral properties of Tm: YAP crystals”, Applied Physics A 127, 1-8(2021).
8. B. Zhang, L. Li, C. He, F. Tian, J. Cui, J. Zhang, and W. Sun, “Compact self-Q-switched Tm: YLF laser at 1.91μm”, Optics Laser Technology 100, 103-108(2018).
9. G. Qin, J. Lu, J. Bisson, Y. Feng, K-i. Ueda, H. Yagi, and T. Yanagitani, “Up-conversion luminescence of Er^{3+} in highly transparent YAG ceramics”, Solid State Communications 132, 103-106(2004).