青色 LD 励起 Pr:YLF レーザーの開発

戸倉川研究室　山岡徹郎

1．はじめに

本研究室では生きたままラベルフリーで生体組織の分布観測が可能な広視野フォトサーマル顕微鏡の開発を進めている。可視光を用いて筋組織のミトコンドリアの観測に取り組んでおり、緑色のパルスレーザーをパンプ光、赤色のパルスレーザーをプローブ光とし、試料に励起光を照射し熱による屈折率の変化が発生している時としていない時の位相分布の差分を取りファトサーマル信号を取得することで観測を行っている。マウスの下肢筋のフォトサーマル分布を取得しており分解能 0.04 nm にて生体試料を観測している[1]。しかし現在市販の可視域半導体ナノ秒パルスレーザーを用いており照射フルエンスが 0.332 nJ/μm^{2}と低い。そのため励起光が照射されているときとされていない時の位相分布のペアを 1 万回撮影し、それらを平均化をする事で位相画像を得ており撮影に 16 分要していることが欠点である。この撮影時間の短縮のためにより高輝度な可視域でのレーザーが求められることから本研究では小型で高出力な青色 LD 励起での~μJ 以上の Pr:YLF 可視域レーザー開発を目指した。

2. 原理

2.1 Pr;YLF 利得媒質

本研究研究ではランタノイド系希土類イオンであるPr^{3+}を用いている。Pr^{3+}添加媒質にて常温で高効率な CW 動作が行われているのはフッ化物系の材料だけであり[2]、これはフッ化物系材料のフォノンエネルギーが低くレーザー上準位寿命が長くなるためである。Pr:YLF のエネルギー準位を図 1 に示す。

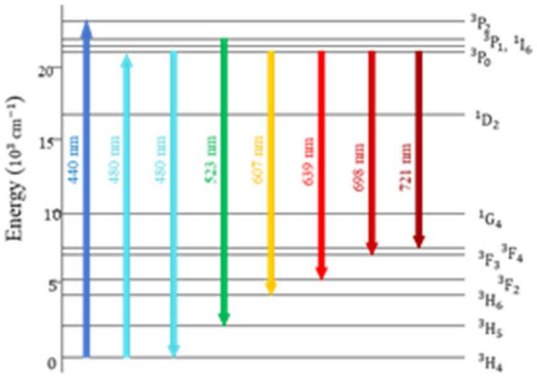

図 1　Pr:YLF のエネルギー準位図

Pr:YLFは 1977 年に室温で固体レーザーとして最短波長の 479 nm での発振が報告され[3]、その後光学遷移に応じて青(480 nm)、緑(523 nm)、黄(607 nm)、オレンジ(610 nm)、赤(640 nm)でレーザー発振が報告されている。特に $^3P_0$から $^3F_2$ 遷移により得られる 640 nm 付近での LD 励起による発振は 20004 年に最大出力 1.5 mW で報告され[4]、その後青色 LD を 4 台用いて最大吸収励起パワー15.0 W にて 6.7 W の出力が報告されており高出力化が進んでいる。[5]

Pr:YLF は 1 軸性の複屈折媒質であり、c 軸に平行なπ偏光と垂直なσ偏光それぞれによって吸収のピーク波長が異なる。Pr イオンを 0.5 at.%ドープした結晶長 10 mm の時 π 偏光では 444 nm で 90%以上の強い吸収が見られ、σ偏光では 441 nm に強い吸収の観測がされている[2]。 図 2 に、報告されている Pr:YLF 結晶の吸収スペクトルと偏光依存発光スペクトルを示す。

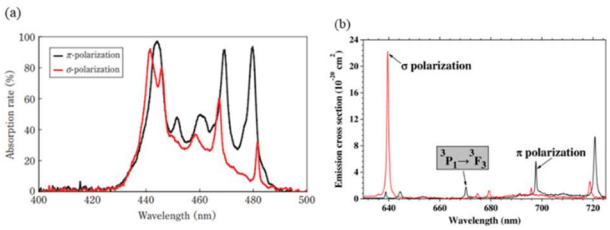

図 2 (a) Pr:YLF 結晶吸収スペクトル
（長さ 10 mm，ドープ濃度 0.5 at.%）[2]
(b) Pr:YLF 結晶の偏光依存発光スペクトル[6]

2.2 共振器設計

共振器内に安定なモードが存在するか検討するために光の伝搬を表す光線行列と自己無撞着法を用いて共振器設計を行った。

自己無撞着法とは、光電磁界が共振器内を 1 周巡回した時に元の分布に回帰しているという条件を課して共振器内の電場分布を求める方法である[7]。 共振器内の任意の位置の定常複素ビームプパラメータをqと表し、ABCD 則を用いて上記の条件を課すと

$$q_s = \frac{Aq_s + B}{Cq_s + D} \tag{1}$$

と表される。式(1)を$1/q_s$について解くと

$$\frac{1}{q_s} = \frac{(D-A) \pm \sqrt{(D-A)^2 + 4BC}}{2B} \tag{2}$$

共振器内の個々の部品に対する行列はユニモジュラー行列であるため$A_iD_i - B_iC_i = 1$を満たす。よって式(2)は

$$\frac{1}{q_s} = \frac{D-A}{2B} \pm i\frac{\sqrt{1-[(D+A)/2]^2}}{B}$$

$$= \frac{D-A}{2B} + \frac{isin\theta}{B} \tag{3}$$

と表すことができる。ただし

$$\cos\theta = \frac{D+A}{2}$$

$$\theta = \pm\left|\cos^{-1}\left(\frac{D+A}{2}\right)\right| \tag{4}$$

である。ビームパラメータqと曲率半径R,ビーム半径wとの関係

$$\frac{1}{q(z)} \equiv \frac{1}{R(z)} - i\frac{\lambda}{\pi w(z)^2} \tag{5}$$

と比較するとビームが閉じ込められる条件は$\sin\theta/B < 0$となり、また共振器が安定するための条件は以下でなければならない。

$$\left|\frac{D+A}{2}\right| < 1 \tag{6}$$

この関係を満たすパラメータを安定条件と呼び、任意の点における曲率半径Rおよびビーム径wは以下の式で求められる。

$$R = \frac{2B}{D-A}$$

$$w = \left(\frac{\lambda}{\pi n}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{\sqrt{|B|}}{[1-[(D+A)/2]^2]^{\frac{1}{4}}} \tag{7}$$

3. 実験

3.1 LD の出力特性の測定

励起光源として用いる LD の出力特性を測定した。LD は日亜化学工業(株)(型番 ND7A75)の GaN 系のブロードストライプ型青色半導体レーザーを用いた。本実験では水冷によって LD ホルダーが 15 ℃になるようにして測定を行った。得られた出力特性の結果を図 3 に示す。

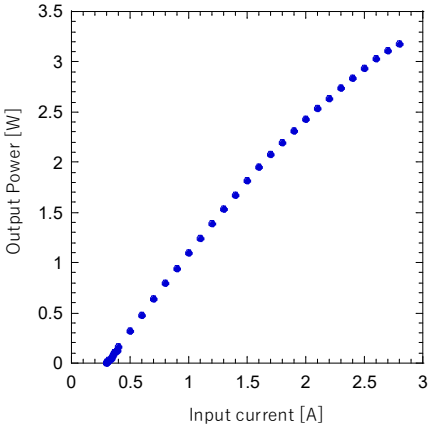

図 3 励起 LD の出力特性

入力電流 2.8 A にて最大出力 3.18 W を得られた。1.6 A 以降線形から外れているように見え、熱の影響が増加したことにより出力が落ちたと考えられる。LD の絶対最大定格は 3.0 A であったが出力が落ち始めたことから 2.8 A 以上の電流を与えなかった。

3.2 モノリシックコリメータによるビームプロファイルの観察

使用した LD はブロードストライプ LD(エミッタサイズ:1×30 μm)であり、水平方向と鉛直方向のビーム拡がり角が大きく異なることからレンズで集光すると楕円形となる。シリンドリカルレンズ対を用いて 1 方向の径のみを拡大し集光径を円にする事が主流であるが、本研究で

はモノリシックコリメータ(Focuslight 社)と呼ぶコリメートとビーム径拡大を 1 枚のレンズで実施することができるレンズを用いて LD からの出射光をコリメート光にした。図 4 にモノリシックコリメータの寸法を示す。

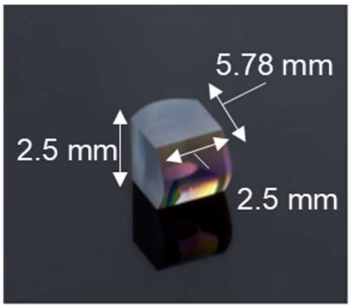

図 4 モノリシックコリメータの寸法図

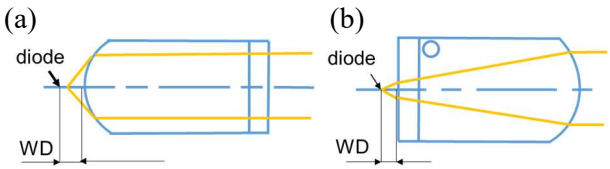

図 5 速軸の光線伝搬図(a) 遅軸の光線伝搬図(b)

レンズの作動距離(WD)及びバックフォーカスは 1.19 mm、有効焦点距離は 5.02 mm であった。図 5 はモノリシックコリメータによる速軸(a)と遅軸(b)の光線伝搬の様子の図である。レンズの長さ分遅軸の径を拡大しつつレンズの入射面にて速軸、出射面にて遅軸を各々コリメート光にしている。

図 6 に示す系にてモノリシックコリメータ透過後のビームプロファイルの観察を行った。

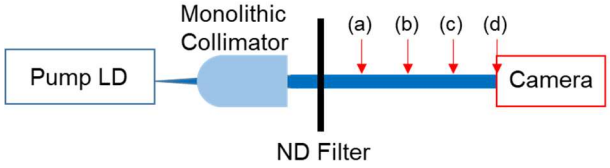

図 6 モノリシックコリメータ透過後のビーム径の観察系

ビームプロファイルの観察には The imaging Source 社の「DMK 23UM021」を用いた。解像度は 1280×960 、ピクセルサイズは 3.75 μm×3.75 μm であった。励起光源から 1.19 mm の距離にコリメート用のレンズを置きカメラの故障を防ぐために減光フィルターを置いてカメラに入る出力を落として測定した。測定位置は(a)100 mm, (b)200 mm, (c)300 mm, (d) 400 mm とした。また出射面から 100 mm、200 mm の位置での観察では減光フィルターを 1 枚増やして観察した。

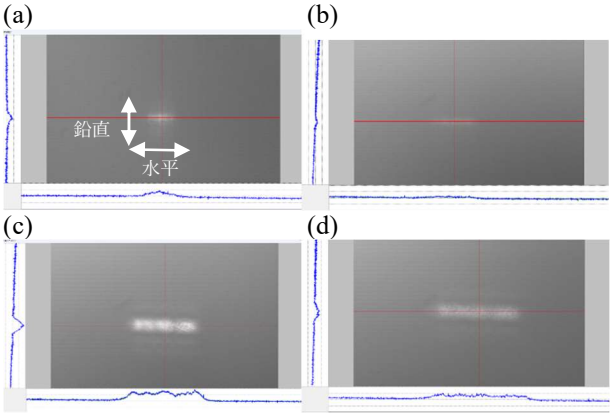

図 7 コリメートレンズ出射後の距離毎のビームプロファイル

表 1 コリメート後のビーム径

距離	方向	観測値 (0.35 A) [μm]	理論値 (2.3 A) [μm]
(a) 100 mm	水平方向	557	1854
	鉛直方向	140	1402
(b) 200 mm	水平方向	967	2555
	鉛直方向	162	1562
(c) 300 mm	水平方向	1546	3255
	鉛直方向	203	1721
(d) 200 mm	水平方向	1967	3955
	鉛直方向	227	1881

求めた理論値よりも明らかに小さなビーム径が観測された。ビーム径から拡がり角を求めると水平方向が 4.81 mrad、鉛直方向が 0.31 mrad であった。また拡がり角からレンズ出射直後のビーム径を求めると、水平方向で 111 μm、鉛直方向で 101 μm であった。鉛直方向のエミッタサイズが 1 μm であるにもかかわらず理論値よりも鉛直方向は 10 分の 1 程の大きさであった事から拡がり角が小さく回折限界を超えていると考えコリメータの出射直後のビーム径か

らエミッタサイズを算出した結果 5.9 μm×27 μm であった。これは LD にて活性層からクラッド層へ光のしみ出しが発生していると考える。またレンズの位置が合っておらずカメラ手前で集光点ができてしまっている可能性も考えられる。

3.3 青色 LD 励起 Pr:YLF 発振実験

発振実験にて用いた共振器の実験図を図 7 に示す。

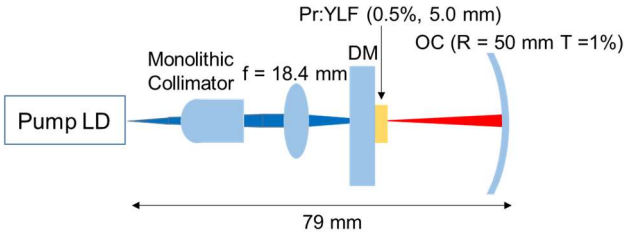

図 7 青色 LD 励起 Pr 固体レーザー発振実験図

600-850 nm にて 99%以上反射の反射率を持つダイクロイックミラー(DM)と取り出し鏡(OC)による直線型の共振器を用いており、励起光源として波長 440~455 nm の LD を用いた。利得媒質は Pr:YLF 結晶(添加濃度 0.5%、結晶長 5.0 mm)であり、水冷を用いてホルダーの上下左右 4 面から 15℃で結晶を冷却しながら実験を行った。焦点距離 18.4 mm の非球面レンズを用いて集光し、OC には曲率半径 50 mm、透過率 1%の凹面 OC を用いた。共振器長は 35 mm とし、LD の出射面から OC までの距離は 79 mm であった。以下の図 8 に前章の自己無撞着法で計算した共振器内の結晶中におけるビーム半径の変化を示す。

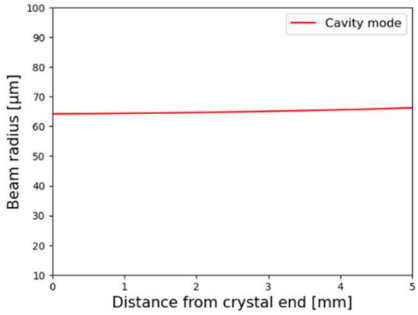

図 8 自己無撞着法で計算した共振器内ビーム半径

図 8 より共振器長 35 mm の時結晶中ではビーム半径が 65 μm 程度となった。

0.6 W 励起で発振実験を試みているが発振には至っていない。発振に至っていない理由として冷却が不十分である事、モードマッチが取れるように集光がされていないこと、励起パワーが足りていないことが考えられる。そのためペルチェ素子を用いて結晶ホルダーを 5℃以下に冷却した上で励起パワーを上げること、拡大像転送を用いた集光ビーム径の測定を行うこと考えている。

4. 結論

本研究では、実験系全体長 79 mm での青色 LD 励起による Pr:YLF レーザーの開発を目指した。0.6 W 励起で発振実験を試みているが発振には至っていない。発振に至らない理由としては冷却が不十分であること、モードマッチが取れるように集光がされていないこと等が考えられ、今後はこれらを改善した発振実験を行う。発振後はフォトサーマル顕微鏡のプローブ光としての応用、530 nm での Q スイッチ発振を行いパンプ光としての応用を考えている。

参考文献

[1] 丸山朋希, 電気通信大学院 修士論文 (2024)
[2] 神成文彦, 応用物理, 第 85 巻, 第 10 号 (2016)
[3] L. Esterowitz, R. Allen, M. Kruer, F. Bartoli, L. S. Goldberg, H. P. Jenssen, A. Linz, V. O. Nicolai, Appl. Phys. **48**, 650–652 (1977)
[4] A. Richter, E. Heumann, E. Osiac, G. Huber, W. Seelert, and A. Diening, Opt. Lett. **29**, 2638-2640 (2004)
[5] H. Tanaka, K. Iijima, Y. Kiyota, and F. Kannari, CLEO Europe 2017, Munich, Germany, CA-1.5 (2017)
[6] Biao Qu and Qilu Huang, Appl. Opt. **59**, 3033-3037 (2020)
[7] ヤリーヴ・イェー著, 多田邦雄, 神谷武志監訳,石川卓哉 *et.al.*共訳, ”ヤリーヴ・イェー光エレクトロニクス 基礎編”, 丸善株式会社 (2010)