



室温発振する緑色 LiF 色中心レーザー

坪井 泰住*・顧 洪恩**

* 京都産業大学工学部 〒603 京都市北区上賀茂本山

** 天津大学物理系 中華人民共和国天津市

(1993年6月17日受付, 1993年8月11日受理)

Room-Temperature-Stable Green LiF Color Center Laser

Taiju Tsuboi* and Hongen Gu**

* Faculty of Engineering, Kyoto Sangyo University,
Kamigamo, Kita-ku, Kyoto 603

** Department of Physics, Tianjin University, Tianjin, China

(Received June 17, 1993; Accepted August 11, 1993)

A green pulsed solid-state laser has been constructed using F_3^+ color centers in LiF crystal. Unlike the other color center lasers, the laser is operated at room temperature. The laser light has a peak at 543 nm. The slope efficiency is about 2% and the pump threshold is about 75 mW. The tunable green laser has shown a long lifetime operation and remarkable amplitude stability by pumping with a pulsed dye (coumarin-460) laser with a repetition rate of 1.2 Hz.

1. はじめに

波長可変固体レーザーとして知られている色中心レーザーでは、アルカリハライドなどのイオン結晶中の陰イオン空格子欠陥・色中心による発光を利用してレーザー光が発振される。その発振波長はイオン結晶の種類および色中心の種類によって異なり、現在 0.8~4.0 μm の近赤外発光のものが圧倒的に多く可視発光レーザーは数少ない^{1,2)}。また、既に市販されている色中心レーザーのように、大部分の色中心レーザーには色中心の安定性から液体窒素で結晶を冷やして発振させなければならない面倒さがある。これまで色中心レーザーはその発振波長から光通信や分子・固体分光研究などに重要な役割を演じてきたが、可視発光する色中心レーザーの開発は光記録や非線形光学などの分野への応用を可能にすると期待される。

可視発光レーザーとしてこれまで、CaO での F^+ 中心を利用して液体窒素温度で青色光発振するものや³⁾、ダイヤモンドや Al_2O_3 結晶中の色中心による室温発振での緑色発光するもの^{1,4)}、LiF での F_3^+ 中心 (別名 R^+ 中心) による緑色レーザー⁵⁾が作られている。アル

カリハライドを母体とする種々な色中心レーザーのうちで、LiF: F_3^+ 結晶が最も短い波長のレーザー光を放つ。

F_3^+ 中心は、結晶中の (111) 面で正三角形に並んだ隣り合う三つの陰イオン (LiF の場合、 F^- イオン) 空格子点に電子が2個捕獲されたもので、その対称性は C_{3v} である⁶⁾。LiF 結晶では F_3^+ 中心の基底状態 1A_1 から第一励起状態 1E への電子遷移による吸収帯が 458 nm にあり、その逆遷移にともなう発光帯が 77 K 528 nm をピークとして幅広く現れる⁷⁾。今回われわれは、小型で手軽に操作 (室温発振を含めて) でき安定に可視光を発振する LiF: F_3^+ レーザーの製作を行った。

2. 実験方法: レーザー媒質と共振器

X線、 γ 線または電子線を照射することにより、陰イオン空格子に電子が捕獲された F , F_2 (別名 M), F_3 (R), F_4 (N) 中心などが結晶中に作られる。 F_3^+ 中心からの発光を強くししかも安定に発振させるには、そのような電子捕獲中心を少なくする必要がある。中でも F_2 中心は F_3^+ 中心と同じ波長領域に吸収帯をもつので、 F_3^+ 中心励起用のポンプ光を吸収し F_2^+ や F_4 中心を作る。作られた F_2^+ 中心の吸収帯は F_3^+ 中心の発光帯と重なる

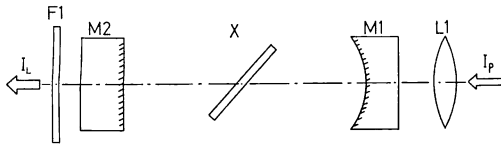


Fig. 1 Optical cavity of LiF: F_3^+ color center laser. I_p : pump beam, I_o : output LiF: F_3^+ color center laser, L1: lens, M1: input mirror, M2: output mirror, F1: filter, X: LiF crystal.

ため、 F_3^+ 中心からの発光は減衰することになる。われわれは F_2 などの色中心の数を少なくし F_3^+ 中心を圧倒的にたくさん作るため、1.5 MeV の電子線 (電流密度: $1 \mu A/cm^2$) を液体窒素温度の LiF 結晶に 30 分間照射し、いったん室温に上げ、その後、約 $-20^\circ C$ に結晶温度を下げてタングステンランプ光を数分間照射した⁷⁾。その結果、吸収スペクトルの測定から、 $2 \times 10^{17}/cm^2$ の密度の F_3^+ 中心が作られ F_2 や F_3 などの色中心がほとんど消えていることを確認した。

この LiF: F_3^+ 結晶 (厚さは 1.65 mm で 10×5 mm の平板結晶) は、クマリン 460 を色素 (エタノール溶媒中でのモル濃度は 0.01 mol/l) とするモレクトロン社製色素レーザーでポンプされた。ポンプ光の波長は 458 nm である。色中心レーザーのパワースペクトル測定にはパルス光の測定が可能なアドバンテスト社製光スペクトルアナライザ, パルス幅測定には浜松ホトニクス社製ストリークカメラを用いた。

レーザー共振器として、色中心レーザーや cw 色素レーザーでよく使われる三つの反射鏡からなる共振器^{1,2)} を今回用いなかった。発振操作を容易にするため、Fig. 1 に示すように二つのミラー M1, M2 からなる共振器を組み立てた。曲率半径 50 mm の凹面をもつ入射ミラー M1 と平板状の出力ミラー M2 との間隔が 30 mm という小型の準共焦点系共振器である。M1 は波長 380~470 nm の光を 80% 透過し 520~560 nm の光に対し 99.8% の反射率を示す。M2 も波長 380~470 nm の光を 80% 透過し 520~560 nm の光を 10% 透過する dichroic ミラーである。波長 458 nm のポンプ光は、ブリュスター角に配置した LiF 結晶に凸レンズ L1 によりフォーカスされて入射する。ポンプ光のビームウェストは結晶表面で約 0.2 mm である。

3. レーザー発振

ポンプ光を作るためのパルス窒素レーザー (337.1 nm 光のパルス幅は 10 ナノ秒) の発振をいろいろなパルス

の繰り返し周波数で試みたが、窒素レーザーの繰り返し周波数が 1.2 Hz のときに LiF: F_3^+ 色中心レーザーが安定して発振することがわかった。これよりも高い 2 Hz 以上の繰り返し周波数のときは、ポンプ光で照射された結晶部分が黒くなり、 F_3^+ 色中心レーザー発振が不安定で最終的には発振が止まった。この回復には数時間待たなければならなかった。照射された箇所が黒味を帯びたのは、500~800 nm の広い範囲にわたって吸収帯をもつ F_2^+ 中心が作られたためである。 F_2^+ 中心は 1.2 Hz のときにも作られていると考えられるが 2 Hz を越えた高い繰り返し周波数での長時間にわたる照射に比べて、単位時間当りのその生成量が少ないため、 F_3^+ 色中心からの発光が F_2^+ 中心による吸収をそれほど受けずレーザー発振に至ったと思われる。

色素レーザー光でポンプすると、Fig. 2 で示すような 543 nm にピークをもつパルスレーザー光 (パルス幅は 12 ナノ秒) が観測された。そのレーザービームの広がり約 3.8 mrad である。このレーザーはポンプ光と同じ偏光を示し、その偏光性はかなりよく 0.996 という偏光度を示した。3 時間以上の連続作動にもその出力はなら衰えず、長期間の繰り返しでの使用に対しても出力パワーの劣化は認められず、きわめて安定である (これは今回の結晶には、 F_2 や F_2^+ 中心がほとんど含まれておらず F_3^+ 中心のみが含まれていたためと考えられる)。スロープ効率は約 2% であり、ポンプ光パワーしきい値は約 75 mW であった。

LiF: F_3^+ 結晶を冷やさなければ、数百ショット後に F_3^+ 発振の出力低下が起こることを以前に報告した⁵⁾。このときに用いられた結晶には、 F_3^+ 中心以外に、 F_3^+ 中心と同じ波長領域に吸収帯をもち 592 nm にピークがある発光帯を生ずる色中心 (X 中心と呼ぶ) が含まれていた。今回の結晶には、このような X 中心は含まれていない。以前のように結晶を冷やさなくても F_3^+ 中心による安定発振を今回達成できたのは、 F_3^+ 中心以外の色中

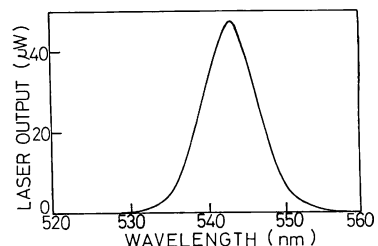


Fig. 2 Output power spectrum of LiF: F_3^+ laser.

心が含まれない LiF 結晶を準備したことが大きく効いている。X 中心が共存すれば、光吸収によって励起された X 中心に 592 nm 発光のほかは無輻射遷移による基底準位への遷移が起こるため温度上昇が生じ、それが発振出力低下につながったものと考えられる。この点については X 中心の同定も含めて今後詳しく検討してみたい。

4. む す び

アルカリハライド結晶を母体とする色中心レーザーの中で、室温で可視発光するものとして、LiF: F₃⁺ レーザーのほかに LiF: F₂ レーザーが知られている。この F₂ 中心を利用するレーザーは 670~710 nm の範囲にわたって波長可変であり、そのスロープ効率は 13% と報告されている⁹⁾。今回製作した LiF: F₃⁺ レーザーはこの 13% には及ばないが、長時間の安定性と小型化されている点で特徴がある。今後も、発振利得を高めるため、F₃⁺ 中心の高濃度化に向けて取り組みたい。また、超短光パルス化がどこまで可能か調べてみたい。

文 献

- 1) L. F. Mollenauer: "Color center lasers," *Laser Handbook*, Vol. 4, ed. M. L. Stitch (North-Holland, Amsterdam, 1985) pp. 145-228; "Color center lasers," *Handbook of Laser Science and Technology*, Suppl. 1, ed. M. J. Weber (CRC Press, Boca Raton, 1991) pp. 101-125.
- 2) W. Gellermann: "Color center lasers," *J. Phys. Chem. Solids*, **52** (1991) 249-297.
- 3) B. Henderson: "Tunable visible laser using F⁺ centers in oxides," *Opt. Lett.*, **6** (1981) 437-439.
- 4) T. T. Basiev, S. B. Mirov and V. V. Osiko: "Room-temperature color center lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, **24** (1988) 1052-1069.
- 5) H. E. Gu, L. Qi and L.-F. Wan: "Broadly tunable yellow-green laser using color centers in an LiF crystal," *Appl. Phys. Lett.*, **52** (1988) 1845-1846.
- 6) R. M. MacFarlane, A. Z. Genack and R. G. Brewer: "Optical freeinduction decay of the F₃⁺ center in NaF," *Phys. Rev. B*, **17** (1978) 2821-2826.
- 7) J. Nahum: "Optical properties and mechanism of formation of some F-aggregate centers in LiF," *Phys. Rev.*, **158** (1967) 814-825.
- 8) T. Kulinski, F. Kaczmarek, M. Ludwiczak and Z. Blaszcak: "Emission characteristics of an LiF: F₂ color center laser in the visible," *Opt. Commun.*, **35** (1980) 120-124.