

新固体レーザー媒質を用いた紫外波長可変レーザー

猿倉 信彦

その高い潜在的需要にもかかわらず、紫外領域では実用的な波長可変光源が定まってはいない。実用的なフォノン終準位波長可変固体レーザーが開発されたなら、いわば“紫外のチタンサファイアレーザー”となり得る可能性がある。紫外波長可変固体レーザーは、1980年頃に Moulton らによるエキシマレーザー励起の $\text{Ce}^{3+}:\text{YLiF}_4^{1)}$ ($\text{Ce}:\text{YLF}$)、 $\text{Ce}^{3+}:\text{LaF}_3^{2)}$ が最初に報告された。近年、 $\text{Ce}:\text{YLF}$ に比べソラリゼーションが軽減された $\text{Ce}^{3+}:\text{LuLiF}_4^{3)}$ ($\text{Ce}:\text{LLF}$) が Dubinskii らにより開発され、さらに $\text{Nd}:\text{YAG}$ レーザーの第4高調波励起が可能なる $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6^{4)}$ ($\text{Ce}:\text{LiCAF}$) や $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6^{5)}$ ($\text{Ce}:\text{LiSAF}$) の開発により、全固体波長可変紫外レーザーへの道が開けつつある。また紫外波長可変固体レーザーの広い利得帯域はチタンサファイアレーザーと同様に超短パルス光の増幅・発生への応用が期待される。

本解説では、既に報告された紫外波長可変レーザー媒質¹⁻⁵⁾とこれらの新レーザー結晶の短パルス応用に関する筆者らの近年の研究から⁶⁻¹⁰⁾、 $\text{Ce}:\text{LLF}$ を用いた短パルス増幅器⁶⁾、自己注入同期による疑似モード同期 $\text{Ce}:\text{LLF}$ レーザーからの紫外ピコ秒パルス列の発生⁷⁾、さらに同様の方法を、 $\text{Nd}:\text{YAG}$ レーザーの第4高調波励起の $\text{Ce}:\text{LiCAF}$ レーザーに適應した例⁸⁾、 $\text{Ce}:\text{LiCAF}$ を用いた全固体素子短パルス発振器/増幅器システム⁹⁾について記述する。

New tunable ultraviolet solid-state lasers (1996年7月11日受理)

Nobuhiko SARUKURA 分子科学研究所 (〒444 岡崎市明大寺町西郷中38)

1. 紫外波長可変固体レーザー

従来は、紫外領域から近赤外領域までの波長可変レーザー媒質として、各種の有機色素やカラーセンターなどが知られていた。しかしこれらのレーザー媒質は、劣化、あるいは低温に限定された動作などの不便な点がある。近年、めざましい進歩を遂げたチタンサファイアに代表される近赤外域のフォノン終準位固体レーザー媒質は、前者のような欠点がない実用レーザー媒質として広く普及した。そして、これらの進歩に刺激された、可視域および紫外領域のより短波長のフォノン終準位固体レーザー媒質の探索も進みつつある。

Ce^{3+} の $5d-4f$ 遷移を用いた紫外波長可変固体レーザー媒質は、1979年にマサチューセッツ工科大学の Moulton らにより $\text{Ce}:\text{YLF}$ (325 nm) と $\text{Ce}:\text{LaF}_3$ (286 nm) が報告されているにすぎなかったが、1992~3年に、ロシア共和国の Dubinskii らにより、 $\text{Ce}:\text{LLF}$ (308~330 nm)、 $\text{Ce}:\text{LiCAF}$ (280~310 nm) が報告され新たに活気がでてきている。これらの媒質は、エキシマレーザーあるいは Nd^{3+} レーザー (YAG, YLF) の第4高調波で励起可能である。図1に個々のレーザーの波長域を示し、以下にその詳細について述べる。

- (1) $\text{Ce}:\text{YLiF}_4^{1)}$: 1979年に Moulton らにより報告された、 Ce^{3+} を活性イオンとする、最初の紫外領域波長可変レーザー媒質であり、歴史的意味は大きい。励起源には KrF エキシマレーザー (248 nm) が使用できる。発振確認波長は 325 nm で、 $300 \mu\text{J}$ 励起で $\sim 1 \mu\text{J}$ の出力が確認された。潜在的波長可変領域は 305~335 nm である。ソラリゼーションによる劣化の問題があり実用性に乏しい。
- (2) $\text{Ce}:\text{LaF}_3^{2)}$: 1980年に、同じく Moulton らによ

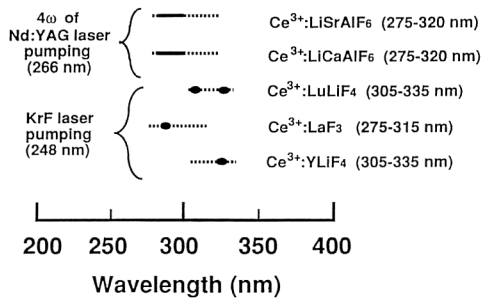


図1 紫外領域のフォノン終準位波長可変固体レーザーの波長可変一覧 (ただし、実線は波長可変確認領域、点線は潜在的波長可変領域、点は発振確認波長を示す)。

り報告された Ce:LaF₃ は、ArF あるいは KrF エキシマレーザーで励起可能であり、発振確認波長は 286 nm で、3 mJ 励起で〜5 μJ の出力が確認された。潜在的波長可変領域は 275~315 nm である。しかし、肯定的な追試が存在しないためにレーザー媒質としての評価が確定していない。

(3) Ce:LuLiF₄³⁾: 1992 年にロシア共和国のカザン大学の Dubinskii らにより報告された Ce:LLF は、KrF エキシマレーザーで励起可能であり、発振確認波長は 305~325 nm である。図 2 に示される光学的特性は、ほぼ Ce:YLF と同じである。しかし、Ce:YLF と比較しソラリゼーションの問題が少ないとされ、より実用化への展望がある。励起源には Nd:YAG レーザーの第 4 高調波は残念ながら使えないことと、原材料のルテシウムがきわめて高価なレアメタルであることが一般化への問題点である。

(4) Ce:LiCaAlF₆⁴⁾: 1993 年に Dubinskii らにより報告された Ce:LiCAF は、Nd:YAG レーザーの第 4 高調波 (266 nm) で励起可能な最初の Ce ドープ紫外レーザー媒質である。その分光学的特性を図 3 に示す。発振確認波長は 288 nm で、2.5 mJ 励起で 150 μJ の出力が確認された。潜在的波長可変領域は 280~320 nm である。現在のところ Ce:LiSAF と比較し低いとされる発振効率、あまりつくりこまれていない LiCAF ホスト結晶が、Cr³⁺ ドープで量産されている LiSAF に比べ品質が悪いためと考えられる。固体励起源が使える点、ソラリゼーションによる劣化がない点などの実用化・一般化への条件を同時に満たす紫外領域波長可変レーザー媒質は、現在のところこの結晶のみである。

(5) Ce:LiSrAlF₆⁵⁾: Ce:LiSAF は、1994 年に、米国のローレンス・リバモア国立研究所、海軍研究所、

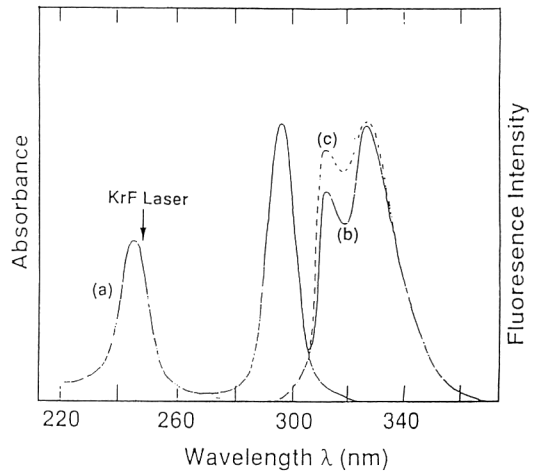


図2 Ce:LLF の吸収・発光スペクトル。KrF エキシマレーザーに吸収領域がきわめてよく一致している。(a) 吸収スペクトル、(b) σ 偏光の発光スペクトル、(c) π 偏光の発光スペクトル。偏光による発光スペクトル強度の差はほとんどない。

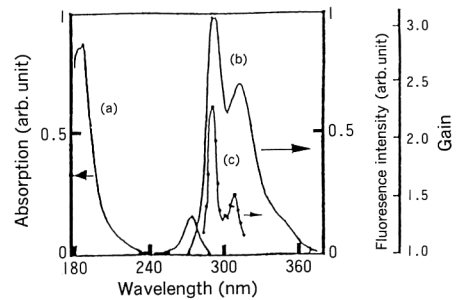


図3 Ce:LiCAF の吸収・発光・利得スペクトル。(a) 吸収スペクトル、(b) 発光スペクトル、(c) 利得スペクトル。Nd:YAG レーザーの第 4 高調波に吸収領域がきわめてよく一致している。

セントラル・フロリダ大学、ライトニング社のグループで開発された結晶であり、Ce:LiCAF と同様に、Nd:YAG レーザーの第 4 高調波 (266 nm) で励起可能である。発振中心波長は 288 nm で、スロープ効率 30% で 1 mJ の出力が確認された。潜在的波長可変領域は 280~320 nm である。発振の効率に関しては、Ce:LiSAF が、Ce:LiCAF (20%) よりも高効率であることが米国のローレンス・リバモア研究所にて確認されている。しかしながら、266 nm の励起光によるソラリゼーションの問題が報告されている。

Ce:YLF, Ce:LaF₃, Ce:LLF の問題点としては、励起源がやや不便なエキシマレーザーであることや、媒質

のソラリゼーションによる劣化の問題があり、幅広い実用化を妨げている。しかし、近年、ロシアのDubinskii教授らにより開発されたCe:LiCAFは、劣化の問題がないうえに、Nd:YAGレーザーの第4高調波(266 nm)で励起可能であり、出力も比較的大きく、広範囲な実用化が期待される。これらの新レーザー結晶の全般的な問題点としては、高品位結晶の安定な供給がない点にある(商用ベースの結晶育成は、わずかに米国ライトニング社がCe:LiSAFをサンプル出荷しているにすぎない)。基礎研究レベルでの新紫外レーザー結晶の有用性が確認されれば、結晶が多量に生産され結晶育成上の問題が徐々に解決されることが期待できる。1982年にレーザー発振したチタンサファイアの場合も、高品質結晶の安定供給が図られたのは、大きな需要が生じた1990年ごろであることを考慮すると、新紫外レーザー結晶の発展はむしろハイペースであるといってもよいであろう。

2. 紫外波長可変固体レーザー媒質を用いた超短パルス光源

紫外波長可変固体レーザーの広い利得帯域は、チタンサファイアレーザーと同様に超短パルス光の増幅・発生への応用が期待される。しかし、これらの新紫外レーザー媒質においては、先に述べたように結晶成長技術が十分に工学的に成熟しきっていないため高品位結晶の安定的供給は難しく、偶然によくできた数少ない小さな結晶を頼りにすべての実験を行わねばならず、基礎レーザー特性の評価以外はあまり進んでいなかった。ここに、筆者らの近年の研究から、これらの新レーザー媒質の超短パルスレーザー光源へ応用研究の初歩的な具体例をいくつか紹介する。

まず、新紫外波長可変レーザー結晶のCe:LLFを用いた増幅器について紹介する。Ce:LLFは、300~345 nmの広い蛍光をもち、KrFエキシマレーザーで励起できる。図4に示すように、モード同期DCM色素レーザーの第2高調波をプローブとし、323~335 nmで利得が確認された。この広い利得帯域幅は、10 fs相当の超短パルスの発生・増幅にも利用可能である。最大単光路利得は5.5倍であり(プローブ:He-Cdレーザー; 325 nm)、図5に示すような共焦点4光路増幅器¹⁾を構築したところ透過光比で約100倍の利得が可能であった。また、ピコ秒チタンサファイア増幅のパルスとQスイッチYAGレーザーの第2高調波の和周波による325 nmのピコ秒パルスを同様の増幅器で増幅したところ、

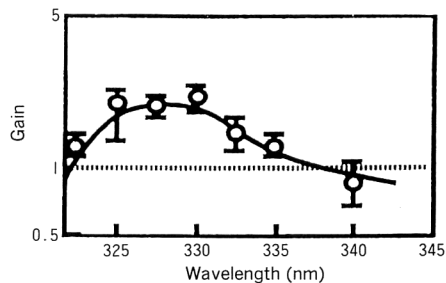


図4 Ce:LLFの利得スペクトル(縦軸は対数表示の利得係数)。励起源はKrFエキシマレーザー、プローブ光は、モード同期色素レーザー(DCM)の第2高調波を用いた。利得ピーク位置はHe-Cdレーザー(325 nm)の波長によく一致している。

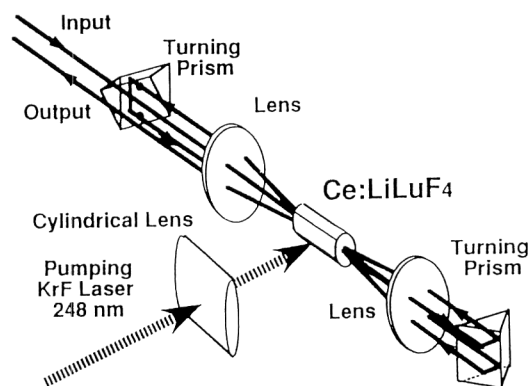


図5 Ce:LLFを用いた共焦点4光路増幅器。チタンサファイアの場合と異なり励起光に対する吸収係数が大きいいため横励起が可能である。

50倍の利得が得られた。これにより紫外短パルスの直接増幅が固体レーザー媒質で初めて実現された⁶⁾。

つぎに、自己注入同期による疑似モード同期Ce:LLFレーザーからの紫外ピコ秒パルス列の発生について述べる。新紫外波長可変固体レーザーはその広い利得帯域幅にもかかわらず、直接の超短パルス発生はCW発振が難しいため、チタンサファイアレーザーのようなKerr効果による超短パルス発生は不可能であり、別の方法を適応する必要がある。ここでは、新提案の自己注入同期による疑似モード同期Ce:LLFレーザーからの紫外ピコ秒パルス列の直接発生について紹介する。自己注入同期パルス列法による疑似モード同期パルス列発生法とは、Q値の低い短共振器で短パルスを発生させ、外部共振器からの遅延帰還により注入同期することにより、再生増幅的に短パルス列を発生させ利得媒質からの効率的エネルギー取出しを行う方法である⁷⁾。この方法

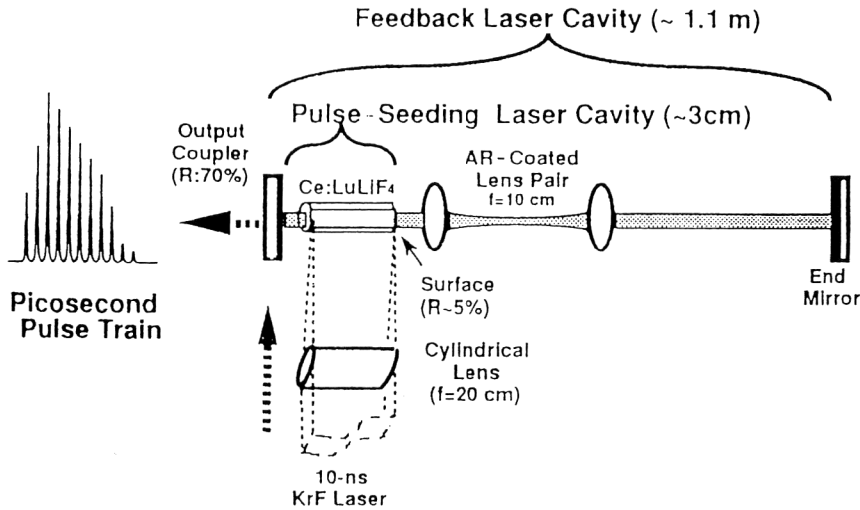
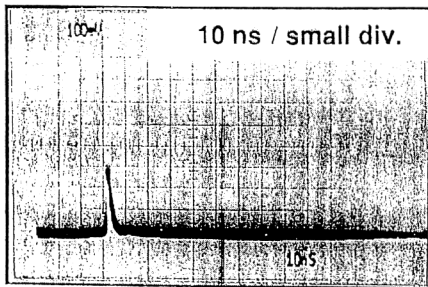
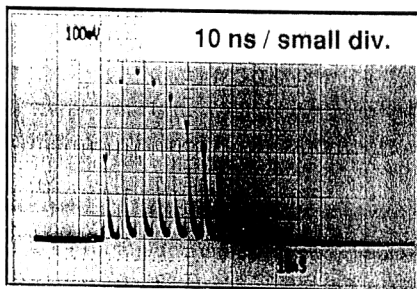


図6 自己注入同期による疑似モード同期 Ce:LLF レーザー。励起源は KrF エキシマレーザーである。



(a)



(b)

図7 (a)自己注入同期のパルス注入 Ce:LLF レーザーからのサテライトパルスのない単一パルス、(b)自己注入同期による疑似モード同期 Ce:LLF レーザーからの Q スイッチモード同期パルス列のような出力波形。

に示す Ce:LLF レーザーから、750 ps、3 μ J、325 nm の単一パルスを得ることができた (40 mJ、KrF レーザー励起)。この出力を共振器長 1.1 m のフィードバックレーザー共振器で遅延し利得媒質に帰還させることにより、図7に示すように全パルスエネルギー 60 μ J のピコ秒パルス列を発生させることに成功した。これにより紫外短パルス列の直接発生が固体レーザー媒質で初めて実現された⁷⁾。さらに同様の方法を、Q スイッチ Nd:YAG レーザーの第4高調波励起の Ce:LiCAF レーザーに適用した例を図8に示す。1.5 cm 共振器長の Q 値が低い (100%、20% 反射率の共振器鏡使用) Ce:LiCAF レーザーから、600 ps、45 μ J、290 nm の単一パルスを得ることができた (励起条件: 20 mJ、266 nm、10 ns、1 Hz)。この出力をフィードバックレーザー共振器で遅延し利得媒質に帰還させることにより、図9に示すように全パルスエネルギー 230 μ J のピコ秒パルス列を発生させることに成功し、そのうちの 8 μ J を取り出した。これにより、励起源を含めて全固体である紫外短パルスレーザーが可能となった⁸⁾。

より大きな出力を得るために、Ce:LiSAF/Ce:LiCAF より構成される発振/増幅システム (MOPA) を構成した例を図10に紹介する。発振器には、発振効率が高いとされる Ce:LiSAF を用い Q 値の低い短共振器を作製した。増幅器には飽和エネルギーが高い Ce:LiCAF を用い共焦点 4 光路増幅光学系を構成し、単一の Q スイッチ Nd:YAG レーザーで励起を行った。現在のところ、発振器 (3 mJ 励起) から 290 nm、590 ps、3

を実現したレーザーからは、Q スイッチモード同期パルス列のような出力が期待される。実際に 3 cm 共振器長の Q 値が低い (70%、5% 反射率の共振器鏡使用) 図6

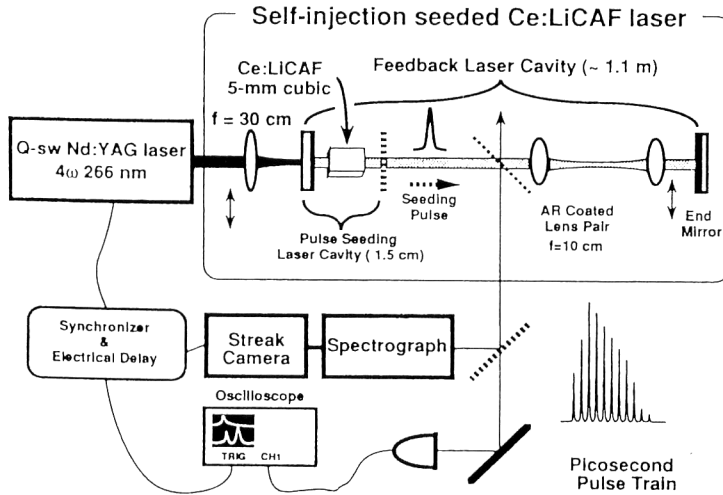


図8 Qスイッチ Nd:YAG レーザーの第4高調波で励起された自己注入同期による疑似モード同期 Ce:LiCAF レーザー。

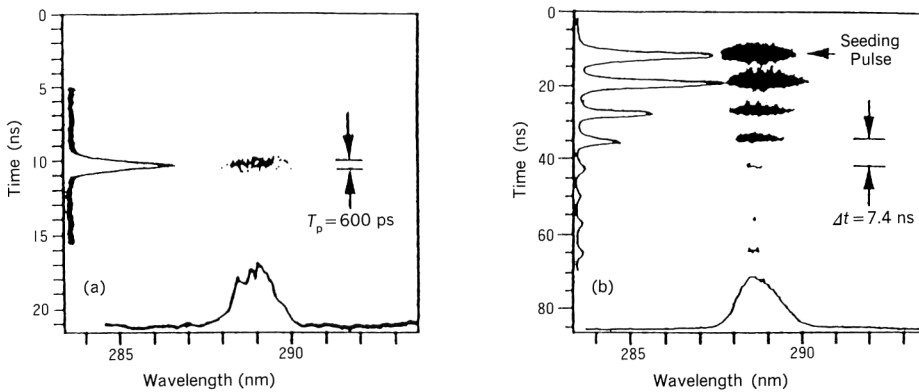


図9 (1)自己注入同期のパルス注入。Ce:LiCAF レーザーからの短パルスのストリークカメラ像。10 ns の励起パルスから 600 ps の出力パルスが発生されている。(2)自己注入同期による疑似モード同期 Ce:LiCAF レーザーからの短パルス列のストリークカメラ像。注入パルス幅により出力パルス列の特性が制御されているのがよくわかる。

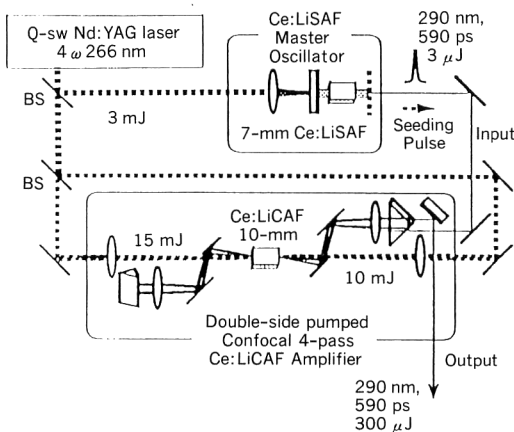


図10 全固体紫外ピコ秒 Ce:LiSAF/Ce:LiCAF 発振/増幅システム (MOPA)。励起源には単一の Nd:YAG レーザーの第4高調波が使用されている。わずか 30 mJ 程度の全励起エネルギーで 300 μJ, 590 ps (0.5 MW) の出力が得られている。ちなみに、励起源を除く光源のサイズは 1×1 m² 程度で、きわめてコンパクトである。

μJ のシードパルスを増幅することにより, $300 \mu\text{J}$, 590 ps (0.5 MW) の出力を得ている (25 mJ 励起). さらに発振器の短パルス化や, 多段増幅系の構築により, 高ピーク出力化が図られるものと期待される⁹⁾.

近年の新レーザー媒質研究の進歩により, 紫外領域の波長可変レーザーが, パルス発振ながらも実現されるようになった. Ce:LiCAF などの有望な結晶の品質を改善することや, Ar レーザーの共振器内第2高調波発生や CW YAG レーザーの外部共振器波長変換などによる強力な紫外 CW 励起光源のさらなる発展により, 近い将来, これらの紫外波長可変固体レーザーが CW 発振することも期待できるであろう.

1982年に開発されたチタンサファイアレーザーの場合, 超短パルス応用は CW 発振が実現された後に始まり, 1992年には 100 femtosecond テラワットシステムが構築されている. ごく近年に有望な Ce:LiCAF 等が開発された紫外波長可変固体レーザーの場合は, 現在のところ, ここに紹介した筆者らの研究で, きわめて初歩的なレベルではあるがその超短パルスレーザー応用への可能性が模索されているにすぎない. しかし, 結晶の高品位化・大型化が図られれば, 励起源を含めて全固体素子のコンパクトな超短パルス紫外波長可変レーザーシステムが近い将来実現され, 既存の超短パルス大出力エキシマレーザーやチタンサファイアレーザーと相補的な光源となり得るであろう.

文 献

- 1) D. J. Ehrlich, P. F. Moulton and R. M. Osgood, Jr.: "Ultraviolet solid-state Ce:YLF laser at 325 nm ," *Opt. Lett.*, **4** (1979) 184-186.
- 2) D. J. Ehrlich, P. F. Moulton and R. M. Osgood, Jr.: "Optical pumped Ce:LaF_3 laser at 283 nm ," *Opt. Lett.*, **5** (1980) 339-341.
- 3) M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Yu

Abdulsabirov and S. L. Korableva: "Spectroscopy of a new active medium of a solid-state UV laser with broadband single-pass gain," *Laser Phys.*, **3** (1993) 216-217.

- 4) M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Yu Abdulsabirov and S. L. Korableva: " Ce^{3+} -doped colquiriite. A new concept of all-solid-state tunable ultraviolet laser," *J. Mod. Opt.*, **40** (1993) 1-5.
- 5) J. F. Pinto, G. H. Rosenblatt, L. Esterowitz, V. Castillo and G. J. Quarles: "Tunable solid-state laser action in $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$," *Electron. Lett.*, **30** (1994) 240-241; C. D. Marshall, J. A. Speth, S. A. Payne, W. F. Krupke, G. J. Quarles, V. Castillo and B. H. T. Chai: "Ultraviolet laser emission properties of Ce^{3+} -doped LiSrAlF_6 and LiCaAlF_6 ," *J. Opt. Soc. Am. B*, **11** (1994) 2054-2065.
- 6) N. Sarukura, Z. Liu, Y. Segawa, K. Edamatsu, Y. Suzuki, T. Itoh, V. V. Semashko, A. K. Naumov, S. L. Korableva, R. Yu Abdulsabirov and M. A. Dubinskii: " $\text{Ce}^{3+}:\text{LuLiF}_4$ as a broadband ultraviolet amplification medium," *Opt. Lett.*, **20** (1995) 294-296.
- 7) N. Sarukura, Z. Liu, Y. Segawa, V. V. Semashko, A. K. Naumov, S. L. Korableva, R. Yu Abdulsabirov and M. A. Dubinskii: "Direct and passive subnanosecond pulse-train generation from a self-injection-seeded ultraviolet solid-state laser," *Opt. Lett.*, **20** (1995) 599-601.
- 8) N. Sarukura, Z. Liu, Y. Segawa, V. V. Semashko, A. K. Naumov, S. L. Korableva, R. Yu Abdulsabirov and M. A. Dubinskii: "Ultraviolet subnanosecond pulse-train generation from an all-solid-state Ce:LiCAF laser," *Appl. Phys. Lett.*, **67** (1995) 602-604.
- 9) N. Sarukura, Z. Liu, S. Izumida, Y. Segawa, M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, S. L. Korableva and R. Yu Abdulsabirov: "Ultraviolet picosecond pulses from an all-solid-state Ce:LiSAF/Ce:LiCAF master oscillator and power amplifier system," *CLEO '96 Summaries of Papers Presented at the Conference on Lasers and Electro-Optics* (Optical Society of America, Washington DC, 1996) pp. 112-113.
- 10) N. Sarukura, M. A. Dubinskii, Z. Liu, V. V. Semashko, A. K. Naumov, S. L. Korableva, R. Yu Abdulsabirov, K. Edamatsu, Y. Suzuki, T. Itoh and Y. Segawa: " Ce^{3+} -activated fluoride crystals as prospective active media for widely tunable ultraviolet ultrafast lasers with direct 10-ns pumping," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **1** (1995) 792-804.
- 11) N. Sarukura and Y. Ishida: "Ultrashort pulse generation from a passively mode-locked Ti:sapphire laser based system," *IEEE J. Quantum Electron.*, **28** (1992) 2134-2141.