

高繰り返し全固体自己誘導 $\text{Nd}^{3+} : \text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ ラマンレーザー濱野 哲英^{*1,*3}・沖田 昌仁^{*2}・伊藤 雅英^{*2}・谷田貝豊彦^{*2}・尾松 孝茂^{*3,*4}^{*1} 古河機械金属株式会社研究開発本部素材総合研究所 〒305-0856 つくば市観音台 1-25-13^{*2} 筑波大学物理工学系 〒305-8573 つくば市天王台 1-1-1^{*3} 千葉大学工学部 〒263-8522 千葉市稲毛区弥生町 1-33High Repetition Frequency Operation in All-Solid-State, Self-Stimulating, $\text{Nd}^{3+} : \text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ Raman LaserAkihide HAMANO^{*1,*3}, Masahito OKIDA^{*2}, Masahide ITOH^{*2}, Toyohiko YATAGAI^{*2}
and Takashige OMATSU^{*3,*4}^{*1} Materials Research Laboratory, Furukawa Co., Ltd., Tsukuba 305-0856^{*2} Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8573^{*3} Department of Image Science, Chiba University, Chiba 263-8522

High repetition frequency yellow output from compact, diode-pumped, self-stimulating $\text{Nd}^{3+} : \text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ Raman laser is presented. The 591 nm yellow average power of 15.2 mW was obtained at a pulse repetition frequency of 300 Hz. And then, the yellow pulse duration was 10 ns (fwhm).

Key words: lasers, diode-pumped lasers, yellow lasers, Raman frequency conversion

1. はじめに

黄色レーザーは、その発振波長が酸化ヘモグロビンの吸収ピーク波長 (589 nm) に対応するため、あざ治療、眼底治療に有効とされている¹⁾。臨床医療に用いるには小型でメンテナンスフリーなレーザー装置であることが望ましいが、既存の黄色レーザー (色素レーザー、クリプトンレーザー) は、装置が大型であり、色素交換、ガス交換のメンテナンスが必要であるという難点を抱えている。

近年、代替光源として、小型でメンテナンスフリーという特徴をもつ全固体黄色レーザーの研究が活発になってきている。これまで、全固体黄色レーザーには、Nd ドープレーザー結晶の 1.06 μm 発振線と 1.3 μm 発振線の和周波発生²⁾、1.12 μm 発振線の第二高調波発生 (SHG)³⁾ などの方法が提案されている⁴⁾。しかしながら、共振器内で和周波を発生させるためには、1.06 μm と 1.3 μm のそれぞれの波長に対応する 2 個のレーザー結晶と共振器が必要となり、装置構成が複雑になる。1.12 μm 発振線の第二高調波の場合は、利得の大きな 1.06 μm 発振線を抑制す

るためのエタロンが必要となり、やはり装置構成要素が増える。また、発振波長は 561 nm と、酸化ヘモグロビンの吸収波長から大きくずれている。

これに対して、誘導ラマン散乱による一次ストークス光発生は、位相整合の必要がなく、大きなラマン活性を示すタングステン酸結晶を用いると、わずか数 cm の結晶で 50% を超える変換効率が達成できる⁵⁾。タングステン酸結晶の中でも $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ (KGW) は、比較的熱伝導率がよく、 Nd^{3+} などのレーザー活性イオンがドープできるので、レーザー結晶と誘導ラマン散乱の機能をあわせもった Nd:KGW 結晶と SHG 結晶だけできわめてコンパクトな黄色レーザーが構築できる。また、発振波長 (591 nm) も酸化ヘモグロビンの吸収波長とほぼ一致する。

Findersen らは、1 at.% の Nd^{3+} をドープした KGW 結晶を用いて、半導体レーザー励起全固体小型自己誘導ラマンレーザーを世界ではじめて発振させた。しかしながら、励起光からみた光-光変換効率は 0.1% にすぎず、平均出力も数 mW にすぎなかった⁷⁾。

^{*4} E-mail: omatsu@faculty.chiba-u.jp

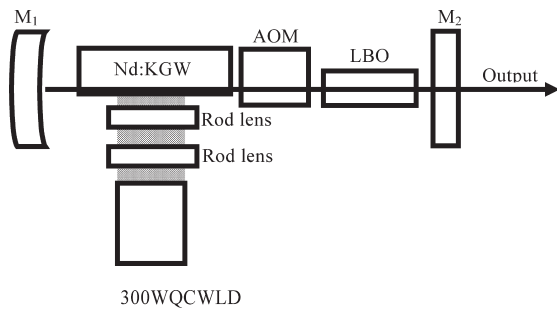


Fig.1 Experimental setup of the diode-pumped self-stimulating, Q-switched Nd:KGW laser. The M_1 and M_2 are the end and output mirrors, respectively. The AOM is an acousto-optic modulator.

筆者らは、 Nd^{3+} を高濃度にドープしたNd:KGD (WO_4)₂結晶を用いて半導体レーザー励起全固体黄色レーザーを構築し、1%を超える光-光変換効率を実現した。繰り返し周波数90 Hz、平均出力は8 mWであった⁸⁾。

今回、筆者らは、励起半導体レーザーを300 Hzまで高繰り返し動作させてパワースケーリングを図った。その結果、最大平均出力にして15.2 mWの黄色レーザー発振に成功した。また、高励起時にみられた黄色レーザー出力の飽和について検討を行い、その原因がレーザー結晶に発生した負の熱レンズ効果によるものであることを明らかにした。

2. 実験

実験光学系をFig. 1に示す。Nd:KGW結晶サイズは $2 \times 5 \times 25$ mmである。Ndドープ量は5.0 at.%である。結晶の N_m 軸は励起面に平行で、 N_p 軸がレーザー光伝搬方向である。結晶は、側面から、300 W QCW (quasi-continuous-wave) LDバースタック (TH-Q1304B, Thales) で励起されている。励起パルス幅は、取り出しエネルギーが最大になるように調整した。励起パルス幅を120 μs より長くしてもパルスエネルギーはほとんど増加しなかったため、以下の実験は、励起パルス幅を120 μs に固定して行った⁹⁾。LDの発振波長は、温度調節によって、結晶の吸収ピーク波長811 nmと同調されている。励起光は、2枚のロッドレンズからなる集光光学系により、結晶側面で $\sim 0.8 \times 15$ mmの大きさに集光されている。共振器は曲率1 mの凹面ミラー (M_1) と平面ミラー (M_2) からなり、共振器長は7 cmである。透過損失の異なる複数の出力鏡を用いて、基本波 (1067 nm)、誘導ラマン散乱の一次ストークス光 (1181 nm) をそれぞれ取り出した。また、基本波から一次ストークス光への変換効率は、共振器内部の基本波光強度に大きく依存するので、音響光学素子

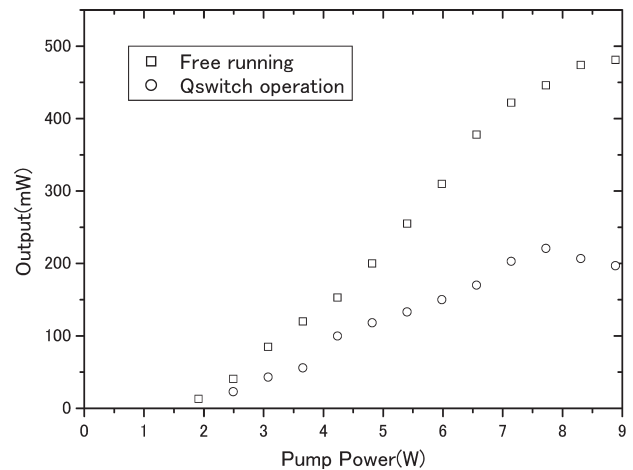


Fig. 2 Experimental fundamental power as a function of pump power.

(acousto-optic modulator, AOM, Gooch & Housgo 社製, QS080-4G-AE5) を用いてレーザーをQスイッチ動作させている。

まず、AOMをオフにしたロングパルス動作時の基本波出力結果をFig. 2に示す。繰り返し周波数は300 Hzである。ロングパルス動作では、取り出しミラーの透過率10%において、励起光パワー9 Wで最大出力481 mWであった。スロープ効率は7.5%、発振閾値は1.9 Wであった。ロングパルス動作時におけるレーザー光の空間モードは矩形でマルチモードであった。縦横のアスペクト比は1:3で、ビーム品質は $M^2 \sim 6$ であった。これに対して、Qスイッチ動作時の空間モードは比較的良好で、 $M^2 \sim 1.3$ であった。また、レーザー出力がロングパルス動作時のレーザー出力に比べ2分の1程度であった。これは、AOMの有効アパーチャ (有効径0.8 mm) が高次空間モードに対して損失を与えたためと考えられる。Qスイッチ動作時に、励起光パワーが7.5 Wを超えると出力飽和がみられた。つづいて、取り出しミラーを基本波に対して全反射のミラーに取り替えて、一次ストークス光の発振を試みた。一次ストークス光の出力特性結果をFig. 3に示す。発振閾値は4.4 Wであった。励起光パワーが7 W以下の場合、一次ストークス光のスロープ効率は0.95%であるが、7 Wを超えると、一次ストークス光出力は急速に低下する。このような出力低下は、基本波発振時にはみられなかった現象である。一次ストークス光出力の最大値は22.5 mWであった。

次に、共振器内第二高調波発生により、黄色レーザー発振を試みた。共振器内のビームウエストに対応する出力鏡近くにLBO結晶 (結晶長: 15 mm) を配置した。LBO結晶は、1181 nmと591 nmに対して室温でType-Iの位

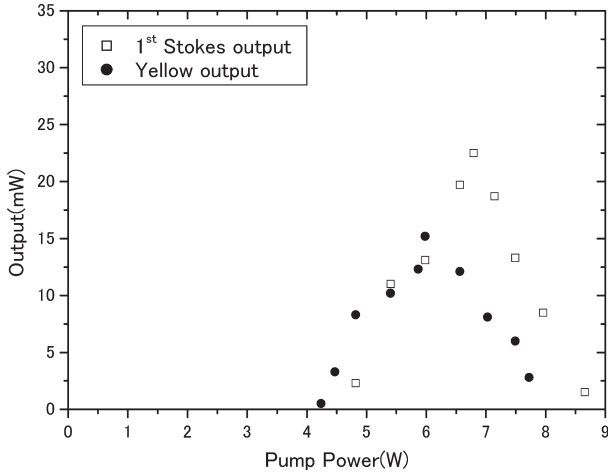


Fig. 3 Experimental Raman and yellow powers as a function of pump power.

相整合となるようにカットされている。2枚の共振器ミラーは、1067 nm と 1181 nm に対して全反射となるようにコーティングが施されている。また、取り出しミラー M_2 は 591 nm に対し全透過である。

黄色レーザーの出力結果を Fig. 3 に示す。発振閾値は 4 W であり、一次ストークス光発振の閾値とほぼ同じであった。励起光パワーが 6 W 以下の場合、黄色レーザー出力のスロープ効率は 0.73% であったが、6 W を超えるとレーザー出力は急速に低下した。また、空間パターンには不安定共振器特有の回折パターンが現れた。この出力低下は、一次ストークス光の出力特性にみられたものと同様である。黄色レーザー平均出力の最大値は 15.2 mW であった。

3. 考察

自己誘導ラマン結晶は、全般に Nd:YAG などと比べ熱伝導率が小さく、熱レンズ効果が顕著に現れやすいことが知られている¹⁰⁾。この熱レンズ効果による共振器不安定性が、高励起時における黄色レーザー出力低下の要因であると考えられる。そこで、有限要素法を用いて非定常熱伝導方程式を解き、Nd:KGW 結晶内に現れる温度分布をシミュレーションした。その結果から、Nd:KGW 結晶に誘起される熱レンズのパワーを評価し、共振器の安定性を検討した。

KGW 結晶は強い異方性を示し、励起方向によって熱レンズ効果は大きく異なる。シミュレーションに用いたモデルを Fig. 4 に示す。結晶は c 面から側面励起されている。励起断面積は $0.1 \times 15 \text{ mm}^2 \times 3$ (間隔 0.25 mm) で、各領域は一樣に励起されている。レーザーは Q スイッチ動作させているので、結晶中に発生する熱量はレーザー非発振

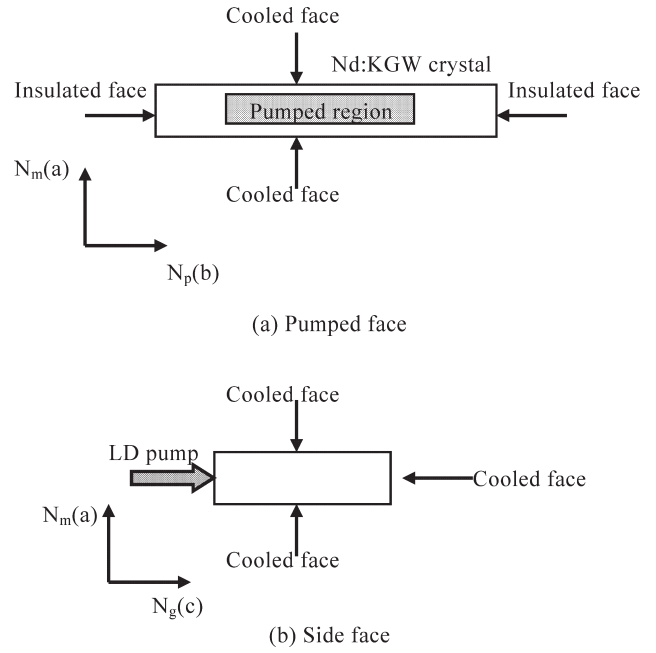


Fig. 4 Pump geometry.

時に近いと考え、励起光とラマンレーザー光の光子エネルギーの量子欠損、濃度消光による非輻射遷移を考慮した。計算に際して、輻射遷移による寿命 τ_{rad} は、異なる Nd 濃度に対する蛍光寿命を Dexter の式と Lupei の式を用いてフィッティングを行い 120 μs と求めた¹¹⁻¹³⁾。また、励起量子効率を 1 とした。アップコンバージョンは考慮しなかった。熱伝導方程式を解くための境界条件として結晶の上下面、奥行き面を温度一定とし、その他の面を断熱とした。熱解析に用いた Nd:KGW 結晶の物性値を Table 1 に示す。熱解析には、三次元熱流体シミュレーションソフトウェア Z-flow (Zephyr 社製) を使用した。励起パルスのパルス幅は 120 μs 、繰り返し周波数は 300 Hz と実験条件に合わせた。励起開始から励起パルス 300 ショットで、励起中に到達する結晶の最高温度はほぼ一定になる。励起開始 300 ショット経過後の、次の励起パルス終了時における b 面の温度分布を計算した結果を Fig. 5 に示す。このときの励起光パワーは 10.8 W である。熱レンズ効果がない場合に共振器を伝播するガウスビームのモード半径 ($\omega_0 \sim 0.3 \text{ mm}$) を用いて、熱レンズパワーの計算を行った。そのため、レーザーモードが結晶中を通過する光軸は励起面から 0.3 mm 奥に、高さ 1 mm のところを N_p 軸に平行であると仮定した。結晶内温度分布 $T(x, \omega_0, z)$ から、結晶通過後の z 軸に沿った位相変化量 $\Delta\phi(z)$ は

$$\Delta\phi(z) = k(dL/dT)/l \int_0^l T(x, z) dx \quad (1)$$

$$dL/dT = ldn/dT + (n-1)\gamma l \quad (2)$$

Table 1 Physical properties of Nd:KGW crystal¹¹⁾.

Refractive indices	$n_p=1.987, n_m=2.014, n_g=2.049$
Refractive index temperature coefficient	$dn/dT_g=-5.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ $dn/dT_m=-0.8 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
Thermal expansion coefficient	$\gamma=1.6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
Thermal conductivity	$K=3.8 \text{ W/m}\cdot\text{K}$
Density	$\rho=7270 \text{ kg/m}^3$
Specific heat	$C=500 \text{ J/kg}\cdot\text{K}$
Laser wavelength	$\lambda_l=1067 \text{ nm}$
Pump wavelength	$\lambda_p=811 \text{ nm}$
Quantum efficiency	$\eta_p=1$
Absorption cross-section (811 nm)	$\sigma=2.6 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$
Absorption coefficient (811 nm)	$\alpha_m=17 \text{ cm}^{-1}$ $\alpha_p=38.5 \text{ cm}^{-1}$

と求めることができる。端面効果は無視した。ここで、 L は光路長差、 l は結晶長、 n は結晶の屈折率、 γ は結晶の線膨張係数である。求めた $\Delta\phi(z)$ を二次関数でフィッティングして、その係数から熱レンズパワーを評価した。この結果、 N_m 軸方向の熱レンズパワーは -1.09 m^{-1} と求められた。

熱レンズ効果を含むアクティブ共振器のモード安定条件は一般に、以下のように記述できる。

$$0 < (1-L/R_1-Db)(1-L/R_2-Da) < 1 \quad (3)$$

ただし、 L は共振器長、 D は熱レンズパワー、 R_1, R_2 はミラーの曲率半径、 a, b はそれぞれ M_1 からレンズまでの距離、レンズから M_2 までの距離である。シミュレーションにより求められた熱レンズパワーを式 (3) に代入すると、励起光パワーが 7.2 W で共振器が不安定領域に入ることがわかる。この結果は、実験とほぼ一致する。一般に、ラマン利得 G_R は

$$G_R = \exp(g_R I_{pump} L) \quad (4)$$

で与えられる。ここで、 $g_R=3.3 \text{ cm}^{-1}$ はラマン利得係数、 $L=25 \text{ mm}$ はラマン結晶長、 I_{pump} は共振器内基本波光強度である。 I_{pump} は $I/\pi\omega^2$ で表される。 I は共振器内基本波ピークパワー、 ω は共振器内基本波モード半径である。この式から、一次ストークス光出力は共振器内の基本波光強度に大きく依存することがわかる。共振器が不安定領域に近づくと、共振器内の基本波モードサイズが急速に大きくなるため、基本波光強度は低下する。熱レンズ効果に対するラマン利得の理論計算結果を Fig. 6 に示す。 I は実験値から 122 kW 、 ω は共振器内を伝播するガウスビームのモード半径を ABCD 伝播行列によって計算した¹⁴⁾。共振器が不安定となる -1 m^{-1} 近傍で、ラマン利得が急激に低下することがわかる。結果として、一次ストークス光の発振閾値を下回り、出力の低下が現れる。黄色レーザーへの変換効率是一次ストークス光出力に比例するので、黄色レーザー出力も同時に低下するものと考えられる。励起光パワー 7 W 前後でみられる一次ストークス光出力の急激な低下は、Nd:KGW 結晶に現れた熱レンズ効果が原因で

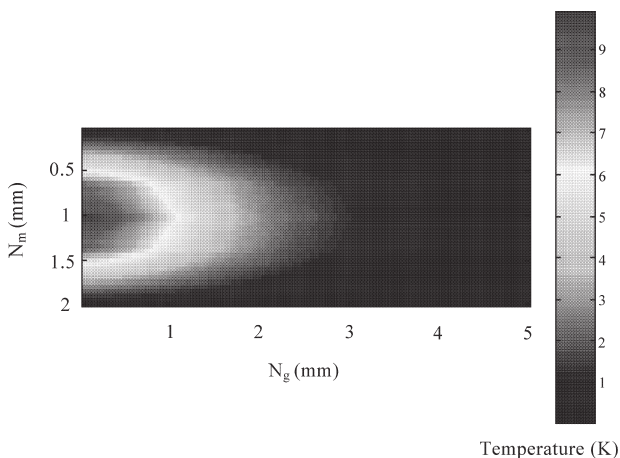


Fig. 5 Simulated temperature distribution of the crystal in the b plane.

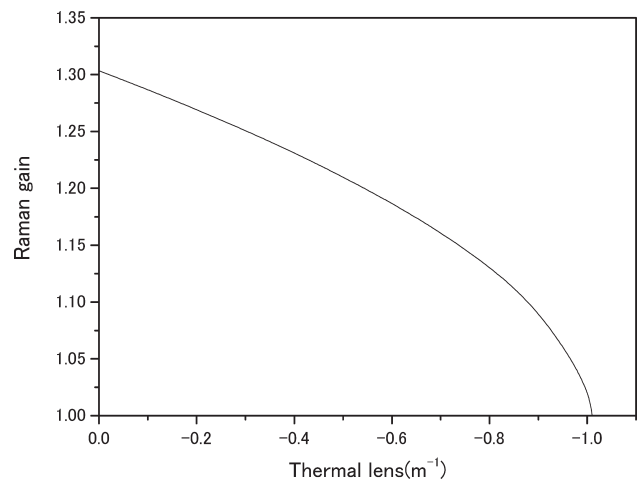


Fig. 6 Simulated Raman gain versus thermal lens.

あると説明できた。

4. ま と め

筆者らは、半導体レーザー側面励起自己誘導Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ラマンレーザー装置を構築し、黄色(591 nm)平均出力15.2 mWを得ることに成功した。この値は、自己誘導ラマンレーザーをベースにした全固体黄色レーザーとして最高値である。また、高励起時には、一次ストークス光、黄色レーザーの急激な出力低下がみられた。この出力低下の主たる原因は、KGW結晶に発生する熱レンズ効果が共振器内部の基本波モードサイズを大きくし、ラマン利得を低減させることにあるとわかった。

文 献

- 1) S. Prael: "Optical absorption of hemoglobin," Oregon Medical Center News, December 15 (Portland, 1999).
- 2) Y. F. Chen, S. W. Tsai, S. C. Wang, Y. C. Huang, T. C. Lin and B. C. Wong: "Efficient generation of continuous-wave yellow light by single-pass sum-frequency mixing of a diode-pumped NdYVO₄ dual-wavelength laser with periodically poled lithium niobate," *Opt. Lett.*, **27** (2002) 1809-1811.
- 3) N. Moore, W. A. Clarkson, D. C. Hanna, S. Lehmann and J. Bosenberg: "Efficient operation of a diode-bar-pumped Nd:YAG laser on the low-gain 1123-nm line," *Appl. Opt.*, **38** (1999) 5761-5764.
- 4) H. M. Pask and J. A. Piper: "Efficient all-solid-state yellow laser source producing 1.2-W average power," *Opt. Lett.*, **24** (1999) 1490-1492.
- 5) R. P. Mildren, M. Convery, H. M. Pask and J. A. Piper: "Efficient, all-solid-state, Raman laser in the yellow, orange and red," *Opt. Exp.*, **12** (2004) 785-790.
- 6) A. A. Kaminskii, H. J. Eicher, K. Ueda, N. V. Klassen, B. S. Redkin, L. E. Li, J. Findersen, D. Jaque, J. Garcia-sole, J. Fernandez and R. Balada: "Properties of Nd³⁺-doped and undoped tetragonal PbWO₄, NaY(WO₄)₂, CaWO₄, and undoped monoclinic ZnWO₄ and CdWO₄ as laser-active and stimulated Raman scattering-active crystals," *Appl. Opt.*, **38** (1999) 4533-4547.
- 7) J. Findersen, H. J. Eicher and P. Peuser: "Self-stimulating, transversally diode pumped Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ Raman laser," *Opt. Commun.*, **181** (2000) 129-133.
- 8) T. Omatsu, Y. Ojima, H. M. Pask, J. A. Piper and P. Dekker: "Efficient 1181 nm self-stimulating Raman output from transversely diode-pumped Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ laser," *Opt. Commun.*, **232** (2004) 327-331.
- 9) J. M. Esmeria, H. Ishii, M. Sato and H. Ito: "Efficient continuous-wave lasing operation of Nd:KGd(WO₄)₂ at 1.067 μm with diode and Ti:sapphire laser pumping," *Opt. Lett.*, **20** (1995) 1538-1540.
- 10) I. V. Mochalov: "Laser and nonlinear properties of the potassium gadolinium tungstate laser crystal KGd(WO₄)₂:Nd³⁺-(KGW:Nd)," *Opt. Eng.*, **36** (1997) 1660-1669.
- 11) D. L. Dexter: "A theory of sensitized luminescence in solids," *J. Chem. Phys.*, **21** (1953) 836-850.
- 12) V. Lupei, A. Lupei, S. Georgescu and C. Ionescu: "Energy transfer between Nd³⁺ ions in YAG," *Opt. Commun.*, **60** (1986) 59-63.
- 13) Y. Kalisky, L. Kravchik and C. Labbe: "Repetitive modulation and passively Q-switching of diode-pumped Nd-KGW laser," *Opt. Commun.*, **189** (2001) 113-125.
- 14) A. Yariv: *Optical Electronics in Modern Communications*, 5th ed. (Oxford University Press, New York, 1997).