慶應義塾大学学術情報リポジトリ
Keio Associated Repository of Academic resouces

Title	プラセオジムドープ固体レーザーによる可視・深紫外域高輝度コヒーレント光源の一新
Sub Title	Renovation of coherent high-brightness visible-deep ultraviolet sources with praseodymium solid-state lasers
Author	神成, 文彦(Kannari, Fumihiko)
Publisher	
Publication year	2017
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2016.)
JaLC DOI	
Abstract	青色半導体レーザー(LD)励起プラセオジム(Pr)3価イオンドープフッ化物レーザーの高出力化および共振器内2倍波発生(SHG)により, 1ミクロン帯レーザーの2～4倍波で対応されていた可視および深紫外波長域のコヒーレント光源を一新するための要素技術開発とレーザー出力スケーリング実証を行った。3.5Wの励起LD4台を用い, 赤(4.8W), 緑(1.8W)の高出力CWレーザー動作, 能動Qスイッチ動作(1W, 5kHz)と共振器内SHG(60mW, 7.7kHz), 高繰り返し受動Qスイッチ操作(1.2W, 105kHz)とSHG(76mW, 50kHz), さらにはじめてCWモード同期発振を実現した。 Development of component technologies and demonstration of laser power scaling were performed for trivalent Praseodymium doped fluoride lasers pumped by blue InGaN diode-lasers (LD) to renovate visible and deep ultraviolet coherent light sources that have been provided by 2nd-4th harmonics of near-infrared lasers. By employing four 3.5-W InGaN LDs, CW lasers at red (4.8W) and green (1.8W), active Q-switching (1W, 5kHz) and its intracavity-SHG (60mW, 7,7kHz), passive Q-switching (1.2W, 105kHz) and its SHG (76mW, 50kHz), and CW mode-locking were achieved.
Notes	研究種目：基盤研究(B)(一般) 研究期間：2014～2016 課題番号：26286065 研究分野：超高速レーザー光学および量子光学
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_26286065seika

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 ２９ 年　 ５ 月 １７ 日現在

機関番号：３２６１２
研究種目：基盤研究(B)（一般）
研究期間：2014～2016
課題番号：２６２８６０６５

研究課題名（和文）プラセオジムドープ固体レーザーによる可視・深紫外域高輝度コヒーレント光源の一新

研究課題名（英文）Renovation of coherent high-brightness visible-deep ultravaiolet sources with praseodymium solid-state lasers

研究代表者
神成　文彦（Kannari, Fumihiko）

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：４０２０４８０４

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　12,200,000円

研究成果の概要（和文）：青色半導体レーザー(LD)励起プラセオジム(Pr)3価イオンドープフッ化物レーザーの高出力化および共振器内２倍波発生(SHG)により、1ミクロン帯レーザーの２～４倍波で対応されていた可視および深紫外波長域のコヒーレント光源を一新するための要素技術開発とレーザー出力スケーリング実証を行った。3.5 Wの励起LD４台を用い、赤(4.8W)、緑(1.8W)の高出力CWレーザー動作、能動Qスイッチ動作(1W, 5kHz)と共振器内SHG(60mW, 7.7kHz)、高繰り返し受動Qスイッチ操作(1.2W, 105kHz)とSHG(76mW、50kHz)、さらにはじめてCWモード同期発振を実現した。

研究成果の概要（英文）：Development of component technologies and demonstration of laser power scaling were performed for trivalent Praseodymium doped fluoride lasers pumped by blue InGaN diode-lasers (LD) to renovate visible and deep ultraviolet coherent light sources that have been provided by 2nd-4th harmonics of near-infrared lasers.By employing four 3.5-W InGaN LDs, CW lasers at red(4.8W) and green (1.8W), active Q-switching(1W, 5kHz) and its intracavity-SHG(60mW, 7,7kHz), passive Q-switching(1.2W, 105kHz) and its SHG(76mW, 50kHz), and CW mode-locking were achieved.

研究分野：超高速レーザー光学および量子光学

キーワード：Pr:YLFレーザー　InGaN半導体レーザー　モード同期　受動Qスイッチ　深紫外レーザー

１．研究開始当初の背景

可視～深紫外域の短波長コヒーレント光源は、レーザー加工において絶対的な利点を有しており、波長 1 μm 帯の高出力レーザーも 3 倍波変換での利用が余儀なくされる。Pr^{3+}イオンをドープしたフッ化物材料は、赤～青の波長域で多くの光学遷移を有することが知られていたが、実用可能なレーザーとして着目されるようになったのは、波長 440 nm 帯 InGaN 青色半導体レーザー(LD)の高出力化が達成されて以来である。我々は、2007 年にいち早く青色 LD 励起で当時世界最高出力の $Pr:LiYF_4$(YLF)レーザーを波長 633 nm で報告した。近年は InGaN-LD の高出力化がさらに進み、単一エミッターで最大 3.5 W が得られる。一方、レーザーの高機能化には高出力化に加えパルス動作が欠かせないが、受動 Q スイッチ、受動モード同期には高性能の可飽和吸収体が必要である。しかし、可視域での高性能な過飽和吸収体は見いだされていなかった。我々は、Cr^{4+}:YAG 結晶が可視域全体における高性能可飽和吸収体であることを見いだし、2013 年に世界初の Q スイッチモード同期発振を波長 633 nm および 532 nm において実現した。この事実は、今まで可視域で存在しなかった直接発振の全固体パルスレーザーの実現のみならず共振器内 2 倍高調波発生による深紫外域高輝度コヒーレント光を実現できることを意味し、この波長域のコヒーレント光源の一新へと導くものである。すなわち、1 μm 帯のレーザーの 3 倍波、4 倍波ではじめて到達できる波長帯を、直接レーザー発振および高効率な共振器内波長変換で達成できることにより、レーザーがその共振器技術をもって達成しうる多くの機能を可視・深紫外域で実現できる。

２．研究の目的

2013 年に我々が世界に先駆けて達成した、Pr^{3+}イオンドープ YLF レーザーの赤(633 nm)および緑(522 nm)波長域での受動 Q スイッチモード同期レーザー発振の事実にもとづき、可視波長域さらには深紫外波長域での高輝度コヒーレント光源をこのレーザーとその共振器内 2 倍波発生で一新すべく、単に出力特性の改善に留まらない多機能なレーザー開発を行う。

３．研究の方法

本研究に用いるレーザー材料は Pr:YLF および Pr^{3+}:ZBLAN ガラスである。後者はこれまでファイバレーザーとして実現されてきており、我々もすでに光音響 Q スイッチ動作を波長可変で実現している。

Pr:YLF に関しては、現状の単一エミッター InGaN-LD 出力の上限が約 3.5 W であることから、励起ビームの空間的重畳による端面励起により熱レンズ等の熱負荷特性出現するレベルまでの領域で連続波(CW) レーザー出力のスケーリングを行う。パルス動作は、すでに Cr:YAG 過飽和吸収体による受動 Q スイッチ動作と音響光学素子による能動 Q スイッチ動作は実現できているので、CW レーザーの高出力化と並行して赤(633 nm)、緑(522 nm)についての Q スイッチ化と共振器内 2 倍波発生(Second-harmonic generation: SHG)による深紫外域での高出力コヒーレント光発生を実現する。

図 1 は、本研究で構築した一例としての 3.5 W 出力の LD 4 台用いた受動 Q スイッチレーザーの共振器セットアップである。

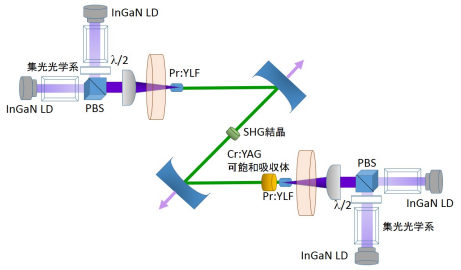

図 1　InGaN-LD 励起 Pr:YLF 受動 Q スイッチレーザー共振器

本研究における最も挑戦的な課題はモード同期動作にある。Pr:YLF レーザーの利得幅はフェムト秒パルス動作には狭すぎるが、共振器内光強度的には Kerr レンズを実現するには十分である。また、赤色帯の半導体過飽和吸収体の使用も行った。

一方、Pr:ZBLAN はガラス素材であるため、吸収および発光スペクトルが広帯域であり半導体レーザー励起および波長同調性に適している。しかし、機械強度的に脆弱でありファイバに加工しても取り扱いに難がある。我々は、フェムト秒レーザーでバルク Pr:ZBLAN ガラスに導波路を書き込み、レーザー発振を行う新型導波路レーザーの原理実証実験をすでに行っており、この導波路レーザー技術の信頼性を確立するための研究を行った。

４．研究成果

表 1 に本研究で得られた各種 Pr:YLF レーザー形態での出力特性をまとめた。

（1）　CW 動作

Pr:YLF 結晶の吸収帯域は~5 nm と狭く、励起光を効率よく吸収させるため LD を温度制御することによって励起レーザーの波長を制御することが求められる。我々はペルチェ素子を用い各 LD の温度を吸収が最大となるよう調整している。最大励起時において、10.8 W の励起吸収パワーを得た。これは結晶に入射した励起パワーの 91%に相当する。発振波長 640 nm では、最大励起時において、出力 4.8 W、スロープ効率 50 %を達成した。これは、現在達成されている Pr:YLF レーザーの出力の中で最大である。

表１　本研究で得られた各種 Pr:YLF レーザー形態での出力特性

レーザー形態 (波長[nm])	平均パワー [W]	ピークパワー [W]	パルス幅 [ns]	繰り返し周波数 [kHz]
CW(639)	4.8	―	―	―
CW(522)	1.8	―	―	―
能動 Q スイッチ(639)	1.0	690	29	5.0
能動 Q スイッチ(522)	0.06	250	32	7.7
受動 Q スイッチ（639）	1.2	229	50	105
能動 Q スイッチ SHG(320)	0.38	594	35	7.7
能動 Q スイッチ SHG(262)	0.067	61.6	142	7.7
モード同期(639)	0.07	13	4.5×10^{-2}	1.1×10^{5}

また、透過率 10 %の波長 607 nm 用出力鏡を用い、２.1 W の出力を得た。

端面励起での約 10 W の励起吸収は、長さ 5 mm の結晶では熱誘起レンズによりレーザー共振器モードに悪影響を与える限界に相当し、実際、熱誘起屈折率が負になるπ偏光軸では凹レンズが発生し、この偏光で発振する波長 522 nm の出力は 1.8 W に制限されている。同様に、本研究では 3.5 W の LD10 個を重畳し単一のマルチモードファイバで結合した光源を端面励起に用いたが、この場合、波長 640 nm においても熱負荷によるレーザー出力の線形スケーリングが阻害された。Nd:YLF においても同様の熱負荷問題は過去に生じており、ドープ濃度を薄くした長尺化と熱レンズ補正共振器の導入が必要なレベルに到達した。一方、Nd および Yb 系レーザーの動向と同じように、さらなる高出力化には薄ディスクレーザーあるいは導波路レーザーが有効である。我々は、熱特性に優れた酸化物母材で且つ高ドープ濃度化が実現できる可能性のあるセラミック母材の開発にも着手した。Pr:YAG セラミックスはすでに報告例があるが、室温レーザー動作は結晶でも不可能である。1 軸性の Pr:YAP, Pr, Mg: $SrAl_{12}O_{19}$ のセラミックス作製が有望である。

（２）　光音響Ｑスイッチ及びＳＨＧ

光音響光学素子を用いたＱスイッチ動作は、Pr:YLF の上準位寿命が 36 μs と比較的短いことから、MW レベルの高ピークパワーの実現には不向きであるが、繰り返し周波数 kHz 領域の可視域パルスレーザーの発生と共振器内 SHG による深紫外レーザーの直接発生を実現できる。出力特性は表１の通りであるが、図２のセットアップにより共振器外での３倍波発生による波長 213 nm パルスの発生も行った。基本波は、平均出力 280 mW、パルス幅 10 ns、繰り返し周波数 5 kHz であり、Type-I LBO 結晶による２倍波で平均出力 37 mW が得られ、Type-I BBO で３倍波発生に成功した。出力はまだ数 10 nJ レベルであるが、共振器内和周波による３倍波直接発生も可能で有り、コンパクトな深紫外レーザーパルス光源となる。

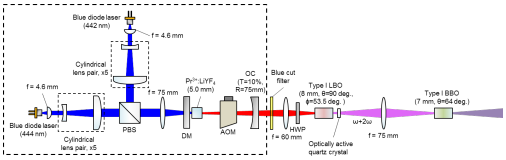

図２　213 nm３倍波発生実験装置

（３）　受動Ｑスイッチ及びＳＨＧ

本研究では Cr:YAG 過飽和吸収体の基礎特性を詳細に計測するために z-scan 法および吸収回復時間計測を行い、Ｑスイッチレーザー動作を定量的に説明可能な数値モデルを構築した。計測の結果、吸収回復には２種類の時定数 26 ns と 5.6 μs が存在し、基底準位と励起準位の吸収断面積はそれぞれ $1.70-1.75\times10^{-17}$ と $0.95-1.00\times10^{-17}$ cm^2 であった。最終的にはこの励起準位吸収が残留吸収となるため、この過飽和吸収体を用いたレーザー動作の効率を制限してしまうことが判明した。

数値モデルから、厚さ 3 mm、ドープ濃度 1at.%の Cr:YAG 結晶と Cr:YAG 過飽和吸収体を用いることで、サブナノ秒のマイクロチップＱスイッチレーザーが実現できることも判明した。

（４）モード同期レーザー

モード同期に利用可能な早い回復時間を有する過飽和吸収体としては、波長 640 nm 帯において InGaP 半導体を用いた半導体過飽和吸収鏡(semiconductor saturable absorption mirror: SESAM)が利用可能であり受動 Q スイッチが実現されている。

我々は、SESAM を用いることではじめて青色 LD 励起モード同期動作を実現した。実験装置図を図 3 にしめす。

レーザー利得媒質は長さ 5 mm、ドープ濃度 0.5at.%、a 軸カットの Pr^{3+}:YLF 結晶

(Uni-Oriental 社)である。励起光源として用いる 2 台の InGaN-LD は最大出力 3.5W である。

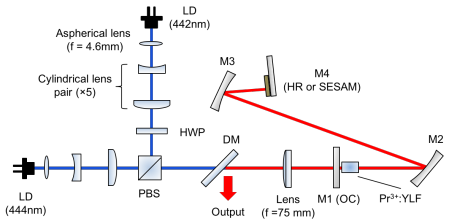

図 3　モード同期 640 nm Pr:YLF レーザー

それぞれの発振波長が 444 nm(π 偏光)、442 nm(σ 偏光)になるようにペルチェ素子で温度制御を施している。 444、 442nm における Pr^{3+}:YLF 結晶の吸収係数および吸収パワーはそれぞれ 3.54、 1.16 /cm および 2.2、1.6 W である。したがって、最大吸収励起パワーは 3.8 W であった。本実験で用いる SESAM (Refkorn 社製)は 40 対の AlGaAs / AlAs ブラッグ反射層の上に AlGaInP 共振器間に厚さ 6 nm の GaInP 量子井戸が存在した構成となっている。反射中心波長は 640 nm、非飽和損失および応答時間はそれぞれ 3 %、300 ps である。SESAM の吸収飽和強度に達するには SESAM における非点収差のない集光の実現が必要とされるが、本実験では発振モードを TEM_{00} と仮定してガウシアンビームのスポット転写方式を用いた共振器設計を行った。また、SESAM でのスポットサイズを 10x10 μm^2 になるように共振器設計を行った。この時、SESAM の飽和強度を上回るために必要な平均出力は 14 mW の平均出力であると見積もられる。なお、このときの励起モードと共振器モードの整合率は 78%と計算された。励起吸収パワー2.8 W 以上の領域において安定な CW−モード同期動作に切り替わった。最大励起吸収パワー3. 8 W におけるレーザー動作は平均出力 68 mW、 繰り返し周波数 108.7MHz、ストリークカメラ(Hamamatsu C4334、分解能 15ps)で取得したこの時のモード同期パルス幅は 45 ps であった。

一方、Kerr レンズモード同期を実現するためには YLF 母材の非線形光学特性では不十分であることから共振器内 SF10 ガラスを配置することでモード同期動作が可能になることを明らかにした。

（５）レーザー直描導波路レーザー

フェムト秒レーザー書き込みレーザー導波路断面の形状は主に図 4 に示した 3 種類である。(1)は正の屈折率変化が誘起される場合、(2)、(3)は負の変化が生じる場合での導波路である。(2)は負の屈折率変化が誘起された領域を 2 本加工し、その間を導波路のコアとして機能させる。コア部は両側の加工部から圧力を受けることによって屈折率が僅かに上昇することが確認されており、応力の影響によって偏光依存性が生じる。(3)はコアとなる部分を円形に囲んだものである。 (1)の構造の導波路は、多くの場合ファイバを媒質端面に突き合わせて光を結合する。結晶媒質中の導波路では、光ファイバとの屈折率差が大きいため、ファイバを突き合わせる方法では効率よく光を結合することが難しく、ガラス媒質中の導波路に適した方法である。多くのレーザー導波路の構造は(2)、(3)であり、これらは自由空間からレンズで集光して励起光を結合する。(2)の形状の導波路レーザーの利点は、媒質が等方媒質（YAG 結晶等）であったとしても、応力に起因する偏光依存性によって、直線偏光での発振が可能となることである。(1)-(3)どの形状の導波路においても高効率なレーザー発振が達成されている。

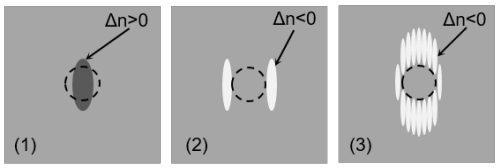

図 4　レーザー直描導波路断面の形状

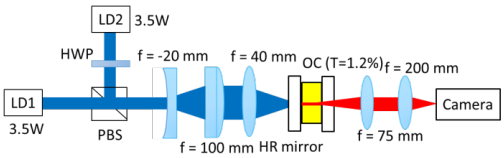

図 5　半導体レーザー励起 Pr:ZBLAN 導波路レーザー

パルスエネルギー4 μJ のフェムト秒レーザーをガラス内部に集光し、図 4 (2)のトラック間隔 15 μm、走査速度は 500 μm/s、クラッドの厚さ 4 μm、長さ 6 mm の導波路を形成した。この導波路 NA は 0.038×0.15、伝送損失は 0.83 dB/cm であった。作成後に端面を研磨し、LD の動作 duty 比を 1/20 に下げ、ピークパワーで 5.4 W の疑似 CW 励起を行った際にレーザー発振に成功した。ZBLAN ガラスの欠点は熱伝導性の悪さにある。平面導波路で用いる場合には、2 次元的に側面への熱伝導冷却構造が必要になる。一方で、可視域での単一モード動作をダブルクラッドファイバーで近赤外域同様に実現するには困難が伴うことから、本導波路の利点は活かされるべきである。

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 6 件）

① Ryota Sawada, Hiroki Tanaka, Naoto Sugiyama, and Fumihiko Kannari, “Wavelength-multiplexed pumping with 478- and 520-nm indium gallium nitride laser diodes for Ti:sapphire laser,” Applied Optics 56, 1654-1661 (2017). 査読有り DOI.org/10.1364/AO.56.001654

② Kodai Iijima, Ryosuke Kariyama, Hiroki Tanaka, and Fumihiko Kannari, “Pr^{3+}:YLF mode-locked laser at 640 nm directly pumped by InGaN-diode lasers,” Applied

Optics 55, 7782-7787 (2016). 査読有り DOI.org/10.1364/AO.55.007782

③ Hiroki Tanaka, Ryosuke Kariyama, Kodai Iijima, and Fumihiko Kannari, "50-kHz, 50-ns UV pulse generation by diode-pumped frequency doubling Pr^{3+}:YLF Q-switch laser with a Cr^{4+}:YAG saturable absorber," Applied Optics 55, 6193-6198 (2016). 査読有り DOI.org/10.1364/AO.55.006193

④ Hiroki Tanaka, Ryosuke Kariyama, Kodai Iijima, Kenichi Hirosawa, and Fumihiko Kannari, "Saturation of 640-nm absorption in Cr^{4+}:YAG for an InGaN laser diode pumped passively Q-switched Pr^{3+}:YLF laser," Optics Express 23, 19382-19395 (2015). 査読有り DOI.org/10.1364/OE.23.019382

⑤ Kenichi Hirosawa, Fumio Shohda, Takayuki Yanagisawa, and Fumihiko Kannari, "In-phase second harmonic wave array generation with intra-Talbot-cavity frequency-doubling," Optics Express 23, 7703-7712 (2015) 査読有り DOI.org/10.1364/OE.23.007703

⑥ Junichiro Kojou, Ryo Abe, Ryosuke Kariyama, Hiroki Tanaka, Akira Sakurai, Yojiro Watanabe, and Fumihiko Kannari, "InGaN diode pumped actively Q-switched intracavity frequency doubling Pr:$LiYF_4$ 261 nm laser," Applied Optics 53, 2030-2036 (2014) 査読有り DOI.org/10.1364/AO.53.002030

〔学会発表〕（計 20 件）

① 田中裕樹、飯島巧大、澤田亮太、清田恭章、杉山直仁、神成文彦、"窒化ガリウム系半導体レーザー直接励起固体レーザー、" レーザー学会学術講演会第 37 回年次大会【招待講演】、2017 年 1 月 7 日～9 日、徳島大学（徳島県、徳島市）

② Fumihiko Kannari, "Solid-state lasers directly pumped by InGaN blue/green diode lasers," CLEO Pacific Rim 【Invited】、2015 年 8 月 24 日～28 日、Busan, Korea

③ Fumihiko Kannari, "InGaN diode pumped Pr-doped solid-state visible lasers," 2014 Laser Display Conference 【Invited】、2014 年 6 月 19 日～20 日、National Chung Hsing University, Taiwan

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕
○出願状況（計 0 件）
○取得状況（計 0 件）

〔その他〕
ホームページ等
http://www.kami.elec.keio.ac.jp/report.html

６．研究組織

(1)研究代表者
神成文彦（KANNARI Fumihiko）
慶應義塾大学・理工学部・教授
研究者番号：40204804