

波長 640 nm での Cr⁴⁺:YAG 結晶の可飽和吸収特性及び受動 Q スイッチ Pr³⁺:YLF レーザ

Characterization of a Cr⁴⁺:YAG saturable absorber at 640 nm and a passively Q-switched Pr³⁺:YLF laser

田中 裕樹 (M2)

Hiroki Tanaka

Abstract

In this report, parameters of a Cr⁴⁺:YAG crystal determining its saturable absorption at 640 nm are presented. The absorption recovery lifetime, the ground- and excited-state absorption cross sections are experimentally estimated, and the numerical simulation with the proposed model of the saturable absorber shows a good agreement with a passively Q-switched Pr³⁺:YLF laser.

1. はじめに

Cr⁴⁺:YAG 結晶は, Nd:YAG, Nd:YVO₄ レーザといった高出力な固体レーザーの受動 Q スイッチ素子として用いられてきた. YAG 結晶が非常にロバストかつ熱伝導率の良い材料であるためことが, 非常に強力なジャイアントパルスの発生を可能にしている. 特に Nd:YAG/Cr:YAG 受動 Q スイッチレーザーはレーザー点火に向けて研究が進んでおり, 現在ではパルスエネルギー 2.7 mJ, パルス幅 600 ps を達成している [1].

1990 年代前半より多くの研究者が Cr⁴⁺:YAG 結晶の光物性を調べてきた. しかしながら, この可飽和吸収体が可視域においても同様に飽和を示すことは近年まで知られていなかった [2]. 波長 1 ミクロンでの飽和特性を決定付ける吸収回復時間及び吸収断面積は既知であるが, 可視域でのこれらのパラメータを決定する試みは未だない. そこで我々は実験的に, 波長 640 nm における可飽和吸収体の諸パラメータを実験的に決定し, 実効的なモデルを提案する. さらに, 実験的に得た InGaN 青色 LD 励起

Pr³⁺:YLF レーザの特性とレート方程式による数値計算の比較から, 提案するモデル及び諸パラメータの妥当性を検討する.

2. ポンププローブ計測による吸収回復時間の推定

まず, ポンププローブ計測により, 波長 640 nm での吸収回復時間を推定した. 実験の模式図を Fig. 1 に示す. 非同軸のポンププローブ計測系であり, ポンプ光として, 能動 Q スイッチ Pr³⁺:YLF レーザから発生させたパルス幅 30 ns, 繰り返し周波数 5 kHz, パルスエネルギーのパルスを, プローブ光として, 同一波長の cw 赤色 LD (出力 10 mW) を用いた.

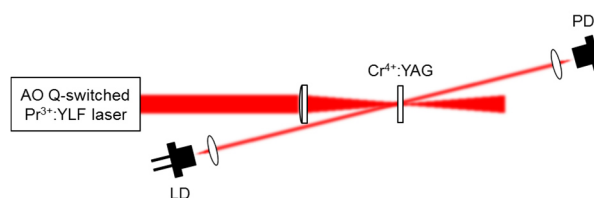


Fig. 1 Experimental setup of the pump-probe measurement.

ポンプ光とプローブ光は共に厚さ 1.3 mm の Cr⁴⁺:YAG 結晶へ入射し, 透過したプローブ光をフォトダイオード (PD) で検出する. ポンプ光の入射時, その強い光強度によって結晶の透過率が上昇し, 同時にプローブ光の透過率も上昇する. パルスの透過後 Cr⁴⁺:YAG の透過率は吸収回復時間に基づく緩和を経て初期透過率へと戻る. その透過率変化は PD によって電圧の時間変化から直接読み取ることが

出来る。PD で計測した電圧の時間変化を Fig. 2 に示す。

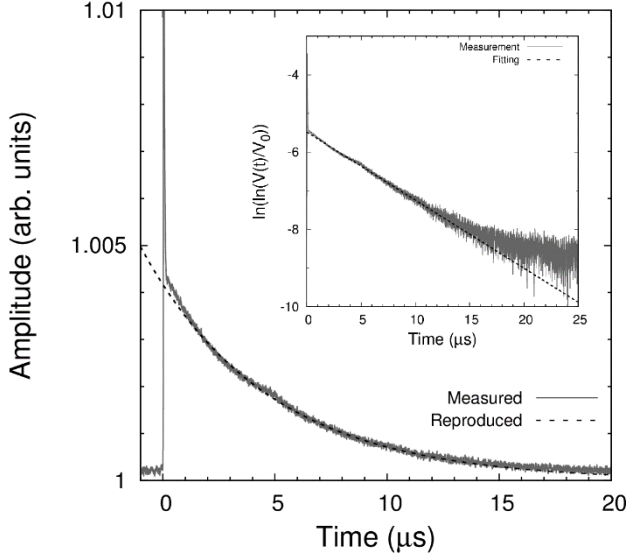


Fig. 2 Recorded PD voltage over 20 μs . The inset is the analysis of the longer recovery lifetime.

上図から明らかであるように、数マイクロ秒の緩和時間の存在が確認できる。また、ポンプパルス入射直後を拡大したものが Fig. 3 である。ポンプパルスの幅は裾から裾で 100 ns 程度であるのに対し、Fig. 3 には、完全にパルスが通過しきった後に、Fig. 2 から確認された長い緩和時間とは他に、短い緩和過程が存在することを示している。

これらの 2 つの図から、それぞれ定量的に吸収回復時間を推定する。一般的な可飽和吸収体は Fig. 4(a) に示すような 4 準位で表現されるが、これは吸収回復時間ないしは励起準位が一つの場合である。そのため、今回は Fig. 4(b) に示す 6 準位系を仮定し、吸収回復時間を推定した。まず、この 6 準位系に基づいた可飽和吸収体の透過率は(1)式によって与えられる。ここで n_{tot} は可飽和吸収に寄与する Cr^{4+} の濃度、 $n_{es}^{(1)}(0)$ 及び $n_{es}^{(2)}(0)$ はそれぞれ励起直後の第一、第二励起準位(Fig. 4 (b) での E_2 、 E_5) の状態密度、 l_{SA} は可飽和吸収体の厚さである。

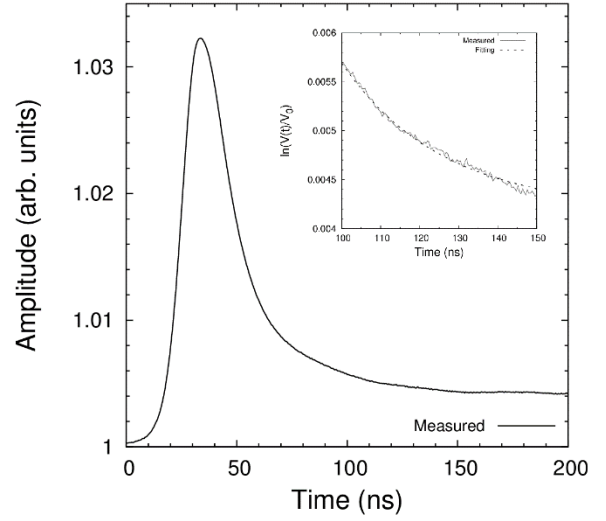


Fig. 3 Recorded PD voltage over 200 ns. The inset is the analysis of the shorter recovery lifetime.

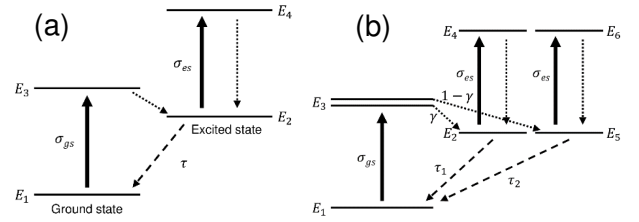


Fig. 4 (a) The four-level system representing a conventional saturable absorber. (b) The modified six-level system modeling the $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ at 640 nm.

$$T(t) = \exp\left(\left(-\sigma_{gs}\left(n_{tot} - n_{es}^{(1)}(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) - n_{es}^{(2)}(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\right) - \sigma_{es}\left(n_{es}^{(1)}(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + n_{es}^{(2)}(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\right)\right) l_{SA}), \quad (1)$$

$t \gg \tau_1$ が満たされる場合、(1)式中の τ_1 を含む項はゼロとみなすことが出来、(2)式に簡略化される。

$$T(t) = \exp\left(\left(-\sigma_{gs}\left(n_{total} - n_{es}^{(2)}(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\right) - \sigma_{es} n_{es}^{(2)}(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\right) l_{SA}), \quad (2)$$

この(2)式の両辺について、初期透過率 $T_0 = \exp(-\sigma_{gs} n_{tot} l_{SA})$ で割り、自然対数を 2 度取ると、

(3)式が得られる.

$$\ln\left(\ln\left(\frac{T(t)}{T_0}\right)\right) = -\frac{t}{\tau_2} + \ln\left(\ln\left(\frac{T(0)}{T_0}\right)\right), \quad (3)$$

これより, 得られた PD 電圧変化に対し同様に, 初期電圧で割り, 自然対数を 2 回取ることにより, 直線が得られ, その傾きが吸収回復時間の逆数に対応することがわかる. この処理を施したものが Fig. 2 のインセットであり, 理論通り直線が得られた. この傾きから, 長い吸収回復時間は $5.6 \mu\text{s}$ と推定された. 一方, $t \ll \tau_2$ が成り立つ領域において, $\exp(-t/\tau_2) = 1$ と見なす事が出来, (1)式は(4)式に簡略化される.

$$T(t) = \exp\left(\left(-\sigma_{gs}\left(n_{tot} - n_{es}^{(1)}(0)\exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) - n_{es}^{(2)}(0)\right) - \sigma_{es}\left(n_{es}^{(1)}(0)\exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + n_{es}^{(2)}(0)\right)\right)l_{SA}\right), \quad (4)$$

この式の両辺を初期透過率 T_0 で割り, 自然対数を取ると, 以下の(5)式が得られる.

$$\ln\left(\frac{T(t)}{T_0}\right) = (\sigma_{gs} - \sigma_{es})n_{es}^{(1)}(0)l_{SA}\exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + (\sigma_{gs} - \sigma_{es})n_{es}^{(2)}(0)l_{SA}, \quad (5)$$

この式は, 実験的に得た PD 電圧を初期電圧で割り, その自然対数を取ると $C_1 \exp(-t/\tau_1) + C_2$ という式でフィッティングが可能であることを示している. Fig. 3 のインセットに示す実線は, 計測された電圧値から計算されたもので, 点線はフィッティングカーブである. $\tau_1 = 26 \text{ ns}$ としたときに最も良いフィッティングが得られた.

以上より, 640 nm において, $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 可飽和吸収体は 2 つの吸収回復時間を持っており, それぞれ 26 ns , $5.6 \mu\text{s}$ と推定された.

3. Z-scan 計測による吸収断面積の推定

次に, 可飽和吸収体の特性を決定付ける基底・励起準位吸収断面積の推定について述べる. 基底準位吸収断面積 σ_{gs} は主に飽和フルーエンスを, 励起準位吸収断面積 σ_{es} は非飽和損失を決定する. 基底準位吸収が顕著であるほど, Fig. 4 に示す基底準位にある状態数は減少しやすく, したがって飽和フルーエ

ンスは小さくなる. 理想的には, 基底準位にある状態数がゼロとなったときに透過率は 100 %になることが望ましいが, 一般にはそうはならず, 必ず日飽和損失が存在する. 理論的な完全飽和時の透過率は $T_{sat} = \exp(-\sigma_{es}n_{tot}l_{SA})$ で与えられる. また, 一般的に, 変調深さ (可飽和吸収体の透過率変化) が大きくなるほどこの非飽和損失は大きくなることが知られている.

Xiao らは Z-scan 計測とレート方程式に基づく数値計算のフィッティングから, 1064 nm での吸収回復時間を推定できることを示した[3]. また, 一つの Z-scan 計測結果 (以下 Z-scan カーブ) では, σ_{gs} と σ_{es} の無限の組み合わせでフィッティングが可能であることを述べている. 今回我々はこの手法を採用し, また, パルスエネルギーを変化させ, 2 つの Z-scan カーブへ同時にフィッティング出来る吸収断面積の組み合わせを見出すことで両吸収断面積を決定した. Z-scan 計測の模式図を Fig. 5 に示す.

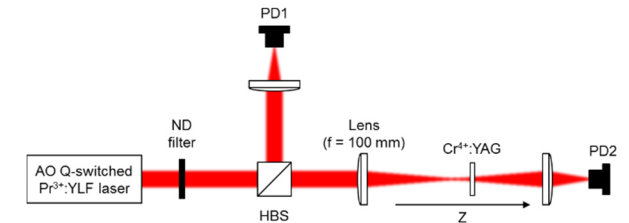


Fig. 5 Schematic view of the Z-scan measurement.

励起光には, ポンププローブ計測と同様に能動 Q スイッチ $\text{Pr}^{3+}:\text{YLF}$ レーザ (パルス幅 15 ns , 繰り返し周波数 5 kHz を用いた. 励起パルスは ND フィルタで適切なパルスエネルギーに減衰された後, ハーフビームスプリッタ (HBS) によって一対一分けられる. 一方のビームは直接 PD へ検出される (PD1). もう一方は $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ へ集光され, その透過光が別の PD に検出される (PD2). $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ の透過率は, 2 つのパルスエネルギーが読み取られるパルスエネルギーの比から推定した. 可飽和吸収体を, 集光点を中心に動かし, 各点での透過率をプロット

し、Z-scan カーブを得る。今回 1.3 mm 及び 2.4 mm の厚さの Cr⁴⁺:YAG 結晶(Scientific Materials Inc.)を用い、共に両面に AR(Anti Reflection)コートがなされている。2つの結晶について計測した、2つの励起パルスエネルギーでの Z-scan カーブを Fig. 6 (a-d) に示す。

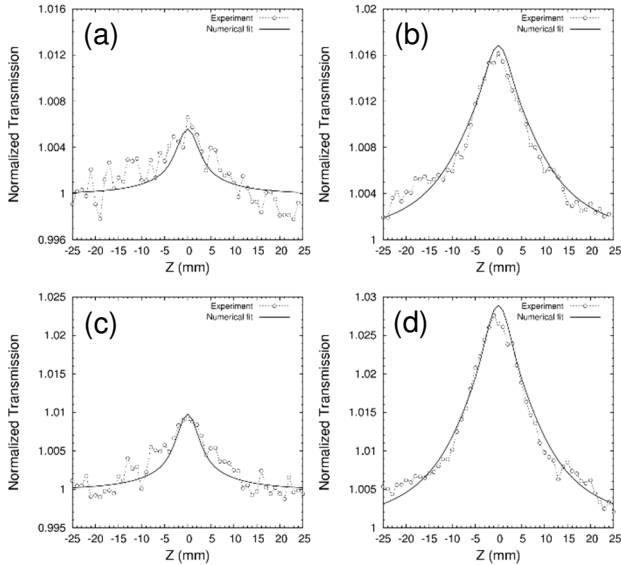


Fig. 6 Z-scan curves obtained with the 1.3-mm long Cr⁴⁺:YAG crystal pumped by (a) 0.6 μJ and (b) 6.0 μJ pulses, and with the 2.4-mm crystal pumped by (c) 0.50 μJ and (d) 5.9 μJ pulses.

図中のプロットが実験結果であり、実線が計算によるフィッティング結果である。数値計算は、励起パルスを時間的かつ空間的なガウス分布を持つと仮定し、Cr⁴⁺:YAG 結晶を厚さ方向へ細分化し、各成分が Fig. 4 で表現される準位系を持つと仮定し、伝搬後のパルスの形状及びエネルギーを計算した。透過率は、入射エネルギーに対する透過エネルギーの比として与えられる。しかしながら、先のポンププローブ計測から、励起準位が2つあることがわかっており、その遷移割合 γ は不明であった。但し、次に示す受動 Q スイッチレーザのレート方程式による数値計算の結果から、短い緩和時間を持つ励起準位への遷移が非常に支配的であることが言える。そ

のことから、Z-scan カーブに対する数値計算では、長い緩和時間を無視して計算した。1.3 mm の結晶での結果に対しては、 $\sigma_{gs} = 1.70 \times 10^{-17}$, $\sigma_{es} = 1.00 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ で、2.4 mm の結晶での結果に対しては $\sigma_{gs} = 1.75 \times 10^{-17}$, $\sigma_{es} = 0.95 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ で計算した時にもっとも良い一致が得られた。

4. 青色 LD 励起受動 Q スイッチ Pr³⁺:YLF

レーザ及びレート方程式による数値計算

次に以上で推定した Cr⁴⁺:YAG 結晶の波長 640 nm における可飽和吸収を特徴付けるパラメータの妥当性を示すため、青色 LD 励起受動 Q スイッチ Pr³⁺:YLF レーザ及びレート方程式に基づく数値計算の比較を行った。

Fig. 7 に受動 Q スイッチレーザのセットアップを示す。励起には出力 3.5 W の青色 LD (日亜化学工業) を 2 つ使い、PBS によって偏向重畳している。また、それぞれビームクオリティの悪い方向に沿ってビーム径をシリンドリカルレンズ対によって 5 倍拡大し、集光スポットの形状を改善している。共振器はダイクロイックミラー (HR@640 nm, AR@~440 nm), HR 凹面ミラー, 凹面アウトプットカップラー (T=8.6 %) で構成され、共振長はおおよそ 22.5 cm であった。利得媒質は 0.5 at. % ドープ Pr³⁺:YLF 結晶 ($\phi 5 \times 5$ mm, uncoated) を用いた。

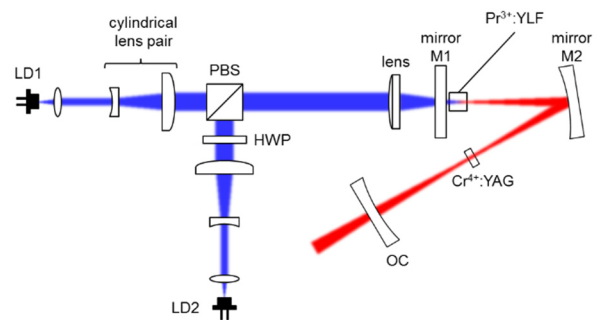


Fig. 7 Setup of the blue-LD-pumped passively Q-switched Pr³⁺:YLF laser.

可飽和吸収体を共振器へ挿入せず、連続発振させた場合、最大励起吸収パワー4.3 Wにおいて、出力 1.52 W、スロープ効率 43.7%を記録した。可飽和吸収体として、上で計測した 1.3 mm、2.4 mm の Cr⁴⁺:YAG 結晶を用いた。受動 Q スイッチ動作時の実験結果を Fig. 8 に示す。

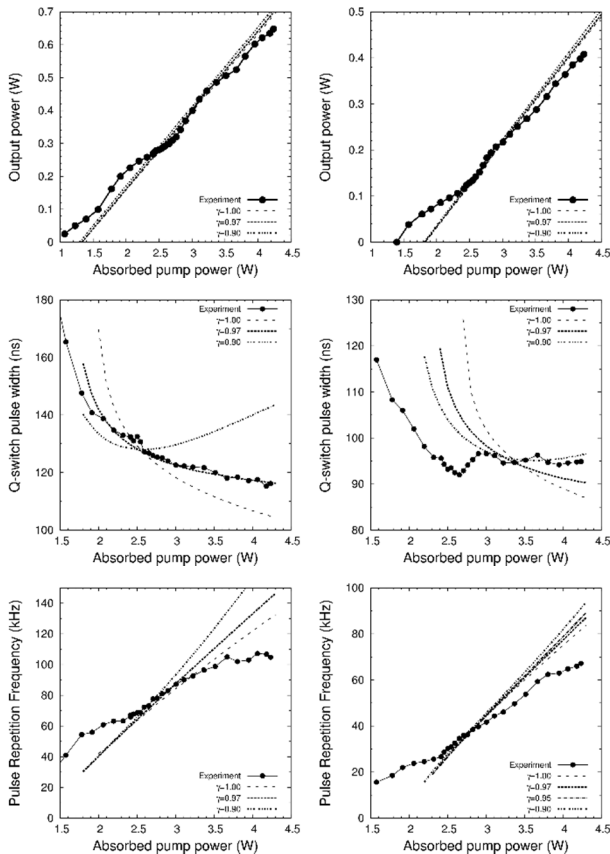


Fig. 8 Experimental and calculated results of the passive Q-switching laser. Three figures on the left are results with 1.3-mm long Cr⁴⁺:YAG crystal, and others are that with 2.4-mm long crystal. Solid-lines correspond to experimentally recorded results, and dashed-lines stand for calculated results.

Fig. 8 に遷移割合 γ を変化させた場合の計算結果を示した。パルス幅のみが大きく変化することが分かる。また、その遷移割合が 0.9 より小さいと、励起吸収パワーの増加に伴い、パルス幅が広くなるという実験結果と一致しない結果が得られることから、

受動 Q スイッチ動作では早い緩和を持つ励起準位が支配的であると言える。遷移割合が 1 に近い領域では実験結果を非常に良く表現しており、上で推定した吸収断面積が精度良く計測された値であると結論付けることが出来る。

5. まとめ

Cr⁴⁺:YAG 結晶の波長 640 nm での可飽和吸収特性を定量的に明らかにした。ポンププローブ計測の結果から、2 つの緩和過程が存在し、それぞれ 26 ns、5.6 μ s の回復時間を持っていると推定された。また、Z-scan 計測およびそれに対する数値解析フィッティングから、基底準位吸収断面積は $1.70 - 1.75 \times 10^{-17}$ 、励起準位吸収断面積は $0.95 - 1.00 \times 10^{-17} \text{cm}^2$ と推定され、これらの値に基づいたレート方程式数値計算は、受動 Q スイッチ Pr³⁺:YLF レーザの実験結果と良く一致した。

References

- [1] 常包 正樹, 平等 拓範: レーザー研究 **42** (2014) 394.
- [2] R. Abe, J. Kojou, K. Masuda, and F. Kannari, "Cr⁴⁺-Doped Y₃A₅O₁₂ as a Saturable Absorber for a Q-Switched and Mode-Locked 639-nm Pr³⁺-Doped LiYF₄ Laser," Appl. Phys. Express **6**, 032703 (2013).
- [3] G. Xiao, J. H. Lim, S. Yang, E. Van Stryland, M. Bass, and L. Weichman, "Z-scan measurement of the ground and excited state absorption cross sections of Cr⁴⁺ in yttrium aluminum garnet," IEEE J. Quantum Electron. **35**, 1086-1091 (1999).