

青色半導体レーザー励起 Pr³⁺:YLF レーザの高出力化, 受動 Q スイッチ動作 及び共振器内第二高調波発生

Power scaling, passive Q-switching, and intracavity frequency doubling of blue-diode-pumped Pr³⁺:YLF lasers

藤田 将吾 (B4), 田中 裕樹 (D3)

Shogo Fujita, Hiroki Tanaka

Abstract

We demonstrate a continuous-wave Pr³⁺:YLF laser pumped by blue laser diodes, and obtain the output power of 6.7 and 3.7 W at 640 and 607 nm, respectively. The Pr³⁺:YLF laser is extended to passive Q-switching by utilizing a Cr⁴⁺:YAG crystal or Co²⁺:MgAl₂O₄ crystal as a saturable absorber. Intracavity second harmonic generation is achieved with this Q-switch laser at 320 nm.

1. はじめに

プラセオジムイオン (Pr³⁺) ドープの結晶は、可視域に多くの光学遷移を持つことから、InGaN 青色半導体レーザーや光励起半導体レーザー共振器 2 倍波 (2 ω -OPSL) を励起源に用いることにより、可視レーザーの利得媒質として利用されてきた[1]。さらに、共振器内第二高調波発生によって直接深紫外光を得ることが可能である。これまで、主に母材結晶としては、フォノンエネルギーが小さく、 σ 偏光に対して熱レンズ効果が小さい LiYF₄ (YLF) や LiLuF₄ (LLF) が用いられてきた。近年では波長 440 nm 帯で発振する InGaN 半導体レーザー(単一エミッター)の出力が約 5 W まで伸びており、これら Pr³⁺レーザーのさらなる高出力化が期待される。現在、Pr³⁺:YLF レーザの連続波での最高出力は、本研究室で過去に達成した波長 607, 640 nm でそれぞれ 2.1, 4.7 W である[2]。

今回我々は、出力 5 W の青色 LD を 4 台用い、波長 607, 640 nm の Pr³⁺:YLF レーザの連続波発振実

験を行い、その出力特性を計測した。さらに、可飽和吸収体として Cr⁴⁺:Y₃Al₅O₁₂ (YAG)と Co²⁺:MALO (MgAl₂O₄)を用いた受動 Q スイッチ動作及び共振器内 2 倍波発生による紫外光パルスの発生実験を行った。

2. Pr³⁺:YLF レーザの連続波発振実験

今回我々は Fig. 1 に示す実験セットアップを用い、波長 607, 640 nm における Pr³⁺:YLF レーザ連続波発振実験を行った。

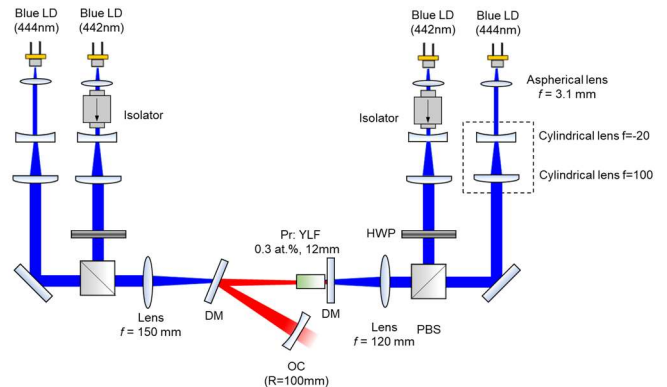


Fig. 1 Experimental setup of CW Pr³⁺:YLF laser.

励起光として、出力 ~5 W の青色 LD を 4 台用いた。Pr³⁺:YLF 結晶は吸収ピークを 444 nm ($E_{||c}$)と 442 nm ($E_{\perp c}$)に持ってあり、中心波長がこれらの波長に近い LD をそれぞれ 2 台ずつ用いた。LD は Pr³⁺:YLF 結晶内での吸収パワーが最大になるようにペルチェ素子によって温度制御を行った。LD は出射後、焦点距離 3.1 mm の非球面レンズによってコリメートされ、焦点距離 -20 mm と 100 mm のシリンドリカルレンズ対によって LD の遅軸方向にビ

ームが拡大される。波長 442 nm の LD のビームは半波長板によって偏光方向を 90°回転した。偏光ビームスプリッタ (PBS) によって波長 442 nm と 444 nm の励起ビームが偏光重畳され、Pr³⁺:YLF 結晶にそれぞれ 2 台ずつ、両側から集光される。利得媒質はドープ濃度 0.3 at.%, 結晶長 12 mm, 外径 5 mm の Pr³⁺:YLF (Unioriental Inc.) であり、銅製の結晶ホルダに固定した。結晶ホルダは水冷され、結晶とホルダの間にインジウムシートを挟むことによって結晶に蓄積する熱を外部に逃がす構造をとっている。用いたミラーは HT@~440 nm, HR@607, 640 nm の 2 つの平面のダイクロイック鏡と、曲率半径 100 mm の凹面出力鏡である。出力鏡の透過率は、波長 607, 640 nm に対してそれぞれ 10, 5% のものを用いた。出力特性を Fig.2 に示す。

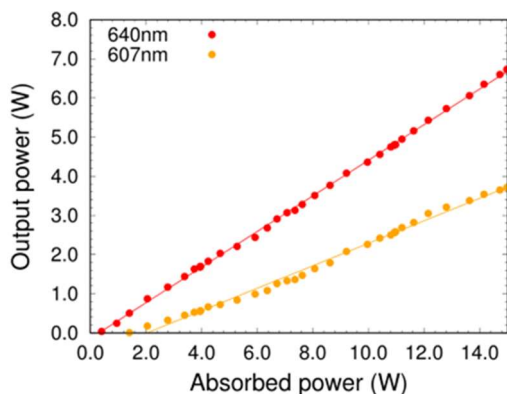


Fig. 2 Output performance of Pr³⁺:YLF laser.

最大吸収励起パワー15.0 W のとき、波長 607, 640 nm においてそれぞれ出力 3.7, 6.7 W が得られ、いずれの波長においても LD 直接励起では過去最高出力である。また、吸収パワーに対するスロープ効率は、607, 640 nm においてそれぞれ 28.7, 45.5% となった。ABCD 行列を用い、結晶中での共振器モード及び励起ビーム径を計算し、モード整合効率の最大値は 444 nm, 442 nm に対してそれぞれ 72, 75% と推定された。607 nm 発振時にスロープ効率が低

いことは、Pr³⁺:YLF 結晶内での自己吸収 (³H₄→¹D₂) に起因しており、今回の実験では出力鏡の透過率を高くし、最適化を行った。

波長 640 nm 発振時に吸収パワーを変化させ、取得したビーム形状を Fig. 3 に示す。

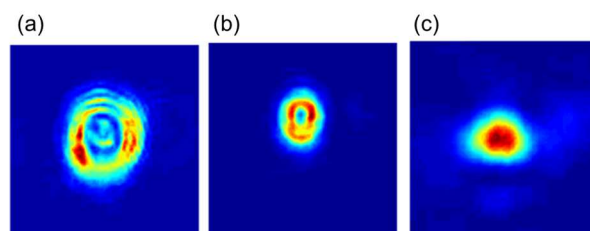


Fig. 3 Beam profile of Pr³⁺:YLF laser. (a) P_{abs} = 15.0 W (b) P_{abs} = 11.0 W (c) P_{abs} = 7.2 W

Figure 3 から分かるように、吸収パワーが増加するにしたがって高次モードの発振が生じていることが見て取れる。特に 11 W 以上の励起ではドーナツ型のビームとなっており、TEM₀₀ よりも高次モードが優先的に発振している。これは、吸収パワーが増加すると結晶中に蓄積される熱が増加し、熱レンズによって生じる収差がビームクオリティを劣化させ高次の波面収差が生じることとなる。この熱レンズ収差は、結晶内での共振器モード径を小さくすることによって改善することが可能である[3]。しかし、モード径を小さくすると励起光とのモードマッチング効率が低下することから、出力は減少するというトレードオフの関係にある。共振器長を変化させることで結晶中のモードを小さくし、最大励起時において Fig. 4 に示すビームプロファイルが得られた。このときの出力は 6.3 W であり、モード整合効率が低下したことによって出力は Fig. 2 の結果から僅かに低下した。

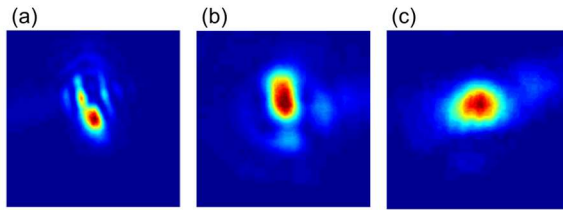


Fig. 4 Beam profile of Pr^{3+} :YLF laser. (a) $P_{\text{abs}} = 15.0 \text{ W}$ (b) $P_{\text{abs}} = 11.0 \text{ W}$ (c) $P_{\text{abs}} = 7.2 \text{ W}$

3. Cr^{4+} :YAG と Co^{2+} :MALO を用いた受動 Q スイッチ動作

次に、 Cr^{4+} :YAG と Co^{2+} :MALO を可飽和吸収体として用いた Pr^{3+} :YLF レーザの受動 Q スイッチ動作について報告する。 Cr^{4+} :YAG と Co^{2+} :MALO は可視域で可飽和吸収特性を示すことが知られており[4,5], さらに Co^{2+} :MALO は Cr^{4+} :YAG では得られない緑波長域での可飽和吸収を示す。そこで、今回は Cr^{4+} :YAG と Co^{2+} :MALO を用いて波長 640 nm での受動 Q スイッチ動作を行い、その特性比較を行った。さらに、 Co^{2+} :MALO を用いて波長 523, 607 nm における Q スイッチ動作も行った。実験セットアップを Fig. 5 に示す。

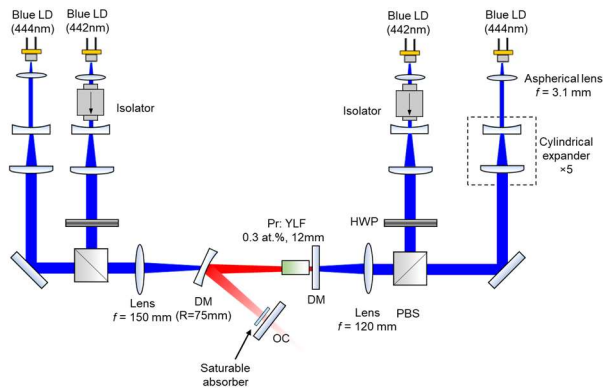


Fig. 5 Experimental setup of passively Q -switched Pr^{3+} :YLF laser.

用いたミラーは HT@~440 nm, HR@523, 607, 640 nm の平面のダイクロイック鏡と凹面のダイク

ロイック鏡, 平面出力鏡である。出力鏡の透過率は, 523 nm で 2.9%, 607 nm で 13%, 640 nm で 10% のものを用いた。 Cr^{4+} :YAG (Scientific Materials Inc.) は, 厚さ 1.3 mm で, 640 nm に対して初期透過率は 94.6%であった。 Co^{2+} :MALO は厚さ 0.35 mm で, 初期透過率は 523, 607, 640 nm に対してそれぞれ 97.4, 93.9, 94.2%であった。640 nm において 2 つの可飽和吸収体の初期透過率はほぼ等しいため, Q スイッチ動作特性から直接比較が可能である。

Fig. 6 に 640 nm 動作時の Q スイッチ動作の特性をまとめた。 Cr^{4+} :YAG を用いた時, 最大平均出力は 1.54 W, スロープ効率は 15.2%となり, 吸収パワーが最大の時のパルス幅は 67.4 ns, 繰り返し周波数は 230 kHz となった。一方, Co^{2+} :MALO を用いた時, 最大出力は 2.25 W, スロープ効率は 22.3%となり, 吸収パワーが最大の時パルス幅は 51.3 ns, 繰り返し周波数は 150 kHz となった。

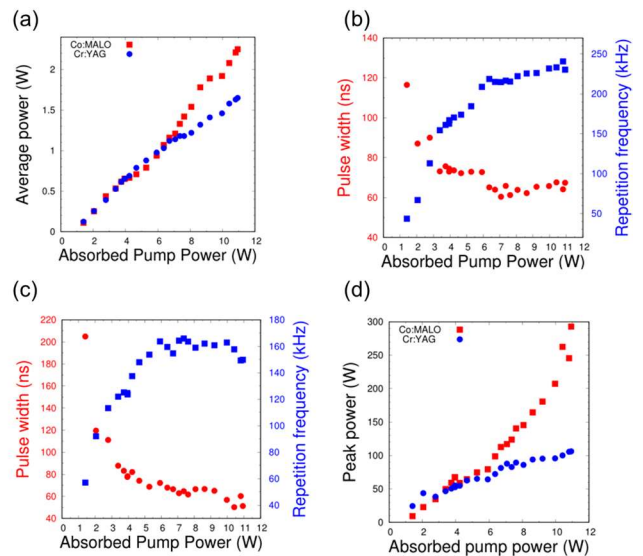


Fig. 6 Experimental results of passive Q -switch operation. (a) Average power. (b) Pulse width and repetition frequency with Cr^{4+} :YAG. (c) Pulse width and repetition frequency with Co^{2+} :MALO. (d) Peak power.

この結果から、 Co^{2+} :MALO を用いた方が、スロープ効率が高く、高出力化が可能であることがわかる。これは、可飽和吸収体が完全に飽和したときの透過率(飽和時透過率)が Co^{2+} :MALO の方が高く、共振器内損失を低く抑えることができたことに起因する。さらに、2つの結晶の初期透過率はほぼ等しかったため、飽和時透過率の高い Co^{2+} :MALO の方が透過率の変調度(飽和時透過率と初期透過率の差)が大きく、パルス幅を短くすることができ、高いピークパワーを得られたと考えられる。

次に、 Co^{2+} :MALO を用いた時の波長 523, 607 nm の Q スイッチパルス特性を Fig. 7 にまとめた。波長 523 nm での動作において、最大出力は 0.43 W, スロープ効率は 4.8% となり、吸収パワーが最大の時パルス幅は 303 ns, 繰り返し周波数は 83 kHz となった。一方、波長 607 nm では、最大出力は 1.14 W, スロープ効率は 17.1% となり、吸収パワーが最大の時パルス幅は 68.3 ns, 繰り返し周波数は 84 kHz となった。

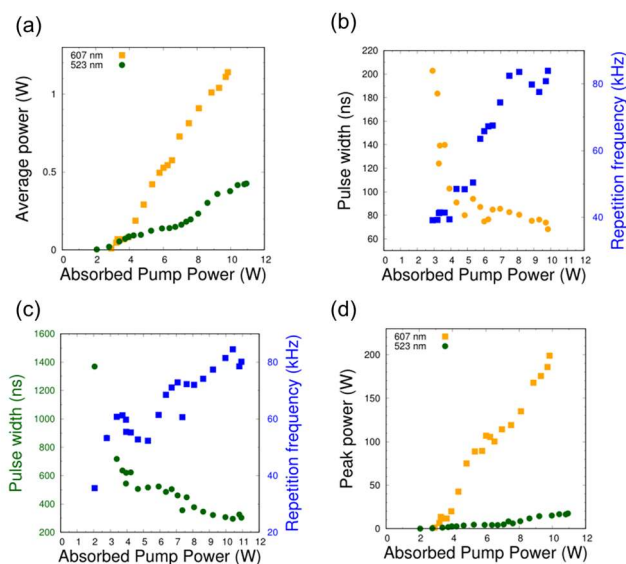


Fig. 7 Experimental results of passive Q -switching operation at 523 and 607 nm. (a) Average power. (b) Pulse width and repetition frequency at 607 nm. (c) Pulse width and repetition frequency at 523 nm. (d) Peak power.

この結果から、波長 523 nm での動作時は、他の 2つの波長と比較してスロープ効率が低く、出力が小さいという結果が得られた。これは、 Pr^{3+} :YLF 結晶の 523 nm の誘導放出断面積は $0.3 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ で、607 nm ($1.4 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$) や 640 nm ($2.2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$) に比べて非常に小さくことに起因し、挿入損失の増加によって特性が大きく劣化するためである。また、 π 偏光で発振するために熱レンズ効果が大きく、かつその実効的焦点距離は負であり、共振器が不安定になりやすい。熱レンズ収差の影響を抑制するため、結晶内でのモード径を小さくし、その分モードマッチング効率が低下したことも出力特性が優れなかった要因である。また、パルス幅も長く、これは 523 nm での Co^{2+} :MALO の初期透過率が高く、透過率の変調度が非常に小さいことに起因すると考えられる。

4. Co^{2+} :MALO を用いた受動 Q スイッチレーザの共振器内第二高調波発生

さらに、 Co^{2+} :MALO と非線形光学結晶を組み合わせ、受動 Q スイッチ共振器内 2 倍波発生を行った。実験セットアップを Fig. 8 に示す。

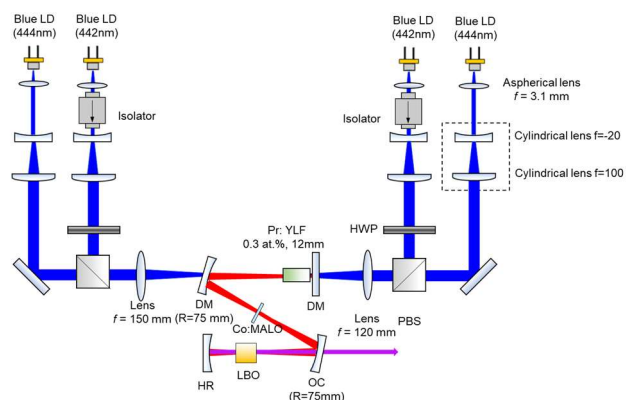


Fig. 8 Experimental setup of intracavity frequency doubled passively Q -switched Pr^{3+} :YLF laser at 640 nm.

640 nm で発振する共振器内での SHG として波長 320 nm の Q スイッチパルスの発生を行った。用いる非線形結晶は Type-I LiB_3O_5 (LBO) で、結晶長は 8 mm、カット角は $\theta = 90^\circ$ 、 $\varphi = 53.5^\circ$ である。用いたミラーはこれまでの実験と同様の平面と凹面の 2 つのダイクロイック鏡に加え、HR@320, 640 nm の曲率半径 50 mm の全反射鏡と、 $T=87\%$ @320 nm, HR@640 nm の曲率半径 75 mm の出力鏡である。

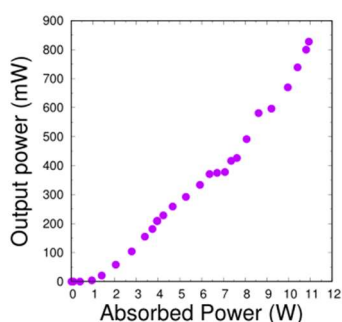


Fig. 8 Output performance of CW laser at 320 nm.

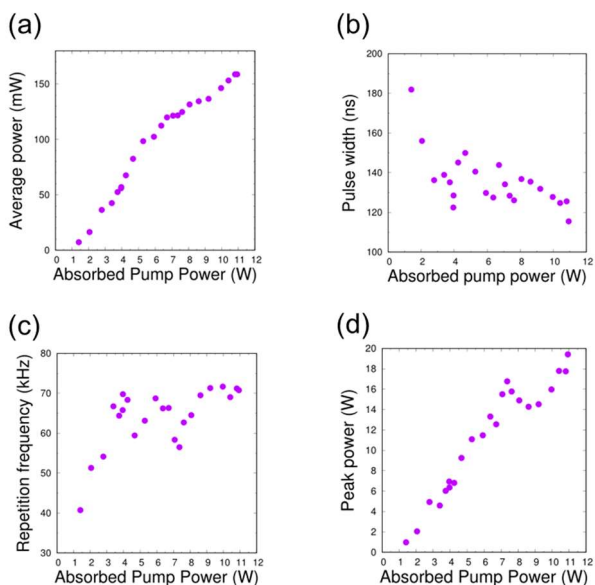


Fig. 9 Experimental results of passive Q -switched SHG operation. (a) Average power. (b) Pulse width. (c) Repetition frequency. (d) Peak power.

受動 Q スイッチ動作を行う前に、可飽和吸収体を入れない状態で連続波として得られる SH 光の出力を計測した。その結果を Fig. 8 に示す。吸収パワーが最大の時、SH 光の出力は最大値 830 mW を得た。次に、共振器内に Co^{2+} :MALO を共振器内に挿入し、受動 Q スイッチ共振器内 2 倍波発生を行った。その結果を Fig. 9 に示す。最大出力は 159 mW で、このときパルス幅は 116 ns、繰り返し周波数は 70.7 kHz となった。

5. まとめ

今回、励起源として青色 LD を 4 台用い、V 字共振器を用いて Pr^{3+} :YLF レーザの連続波発振実験を行い、607, 640 nm における最高出力を得た。しかし、熱レンズ収差によってビームクオリティは大きく悪化した。励起源である青色 LD の出力は未だ伸び続けており、Pr レーザ高出力化には、熱レンズ効果の抑制が必須である。YLF 等のフッ化物に代え、今後は Pr^{3+} : YAlO_3 (YAP: Ytterium Aluminum Perovskite) や Pr^{3+} , Mg^{2+} : SrAl_2O_9 などの熱伝導率の高い酸化物を用いることが求められると考えられる。

今回連続波動作に加え、 Cr^{4+} :YAG による波長 640 nm、 Co^{2+} :MALO による 523, 607, 640 nm での Q スイッチパルス発生実験を実施した。これらの 2 つの可飽和吸収体の比較実験より、高ピークパワーを得るためには Co^{2+} :MALO の方が、その非飽和損失が小さいことから有用であることが示された。さらに、 Co^{2+} :MALO と LBO を用いて受動 Q スイッチ共振器内 2 倍波発生による紫外光パルスの発生も行った。緑の領域で可飽和吸収特性を示す Co^{2+} :MALO と BBO 結晶を用いることで、波長 523 nm の共振器内二倍波として 261 nm の深紫外光パルスの発生も可能である。

References

- [1] C. Kränkel, D.-T. Marzahl, F. Moglia, G. Huber, and P. W. Metz, "Out of the blue: semiconductor laser pumped visible rareearth doped lasers," *Laser Photon. Rev.* 21, 1–21 (2016).
- [2] H. Tanaka, K. Iijima, Y. Kiyota, and F. Kannari, CLEO Europe 2017, Munich, Germany, CA-1.5 (2017).
- [3] W. A. Clarkson, "Thermal effects and their mitigation in end-pumped solid-state lasers," *J. Phys. D. Appl. Phys.* 34, 2381 (2001).
- [4] H. Tanaka, R. Kariyama, K. Iijima, K. Hirose, and F. Kannari, "Saturation of 640-nm absorption in Cr⁴⁺:YAG for an InGaN laser diode pumped passively Q-switched Pr³⁺:YLF laser," *Opt. Express* 23, 19382–19395 (2015).
- [5] M. Demesh, D.-T. Marzahl, A. Yasukevich, V. Kisel, G. Huber, N. Kuleshov, and C. Kränkel, "Passively Q-switched Pr:YLF laser with a Co²⁺:MgAl₂O₄ saturable absorber," *Opt. Lett.* 42, 4687–4690 (2017).