

**紫外チャープパルス増幅レーザーシステム
に用いられる増幅媒質の利得評価法の開発**

**Development of gain-media evaluation method
for ultraviolet chirped-pulse-amplification laser systems**

小関 俊政

工学博士

総合研究大学院大学

先導科学科

光科学専攻

目次

1. 序論	
1.1 背景と本研究の意義	1
1.2 固体紫外レーザー媒質の歴史	3
1.3 参考文献	7
2. ポンプ・プローブ法によるレーザー媒質の利得評価	
2.1 レーザー媒質の利得と増幅	
2.1.1 レーザー媒質の利得測定とは	11
2.1.2 誘導放出と増幅	12
2.2 従来のポンプ・プローブ法	14
2.3 新しいレーザー媒質評価法	
2.3.1 2つのレーザー媒質を用いた利得評価法	18
2.3.2 新レーザー媒質評価法の数値シミュレーション	19
2.3.3 新ポンプ・プローブ法の実験配置	25
2.3.4 フッ化物紫外レーザー媒質の利得測定	29
2.4 利得測定の結果に基づく $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSr}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{AlF}_6$ のレーザー発振	32
2.5 フッ化物結晶の新しい励起チャンネル	35
2.6 新レーザー媒質利得評価法の特長	39
2.7 参考文献	40
3 広帯域固体利得媒質、 $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ を用いた 紫外フェムト秒のチャープパルス増幅	
3.1 $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ レーザー	41
3.2 XeF の 3 次の自己相関による紫外フェムト秒の単パルス計測	41
3.3 高利得共焦点 4 光路 $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ フェムト秒パルス増幅器	44
3.4 $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ 結晶を用いた 紫外フェムト秒のチャープパルス増幅 (CPA)	48
3.5 大開口 $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ 結晶を用いたパワー増幅器の開発	55
3.6 紫外領域でのレーザーパルス増幅	58
3.7 参考文献	62
4. 結論	64

5. 付録	
5.1 Czochralski (チョクラルスキー) 法	65
5.2 LiCaAlF ₆ 結晶の真空紫外光学材料の応用	
5.2.1 LiCaAlF ₆ 結晶の屈折率の測定	67
5.2.2 LiCaAlF ₆ 結晶の撮像光学系への応用	71
5.3 相関幅時間幅比の導出	76
6. 業績リスト	
6.1 発表論文	78
6.2 学会発表	84
7. 謝辞	86

論文要旨

High-intensity light sources in the UV region are in high demand in various applications such as basic research, high-intensity physics, spectroscopy, material processing, and pump sources for XUV (extremely ultraviolet) and VUV (vacuum ultraviolet) generation. In this thesis, a novel optical evaluation method for new laser materials for high-intensity solid-state lasers in the UV region is described. By using this method, it is found that Ce^{3+} ion-doped fluoride crystals have potential for the development of the lasers because of their broad-band gain spectra and peak gain at a wavelength of around 290 nm. A high-peak power laser in the UV region is demonstrated by CPA (chirped-pulse amplification) utilizing $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ (Ce:LiCAF) crystal as a gain medium for the amplifier.

In chapter 1, the motivation and the background of our research are addressed. In chapter 2, the newly developed method for the evaluation of gain media is described. In chapter 3, ultrashort pulse generation in the UV region using a solid-state gain medium is described. Finally, in chapter 4, the conclusion is presented.

High-peak-power lasers using Ti:sapphire crystals as laser media opened up new fields such as material processing, XUV and VUV generation, high-field physics, and ultrafast spectroscopy. They have been limited in the infrared (IR) region because of the properties of the gain media. Recently the development of high-peak-power lasers in a shorter wavelength region has been strongly required for advanced research. In order to generate output ultrashort pulses in the UV region, a wavelength conversion from IR to UV was performed. However, the conversion was not sufficient because of low efficiency. A CPA laser system utilizing KrF excimer as gain medium has been demonstrated at a wavelength 248 nm. Excimer lasers have been widely used as coherent light sources in the UV region. However, their drawbacks include the narrow gain spectrum, bulkiness and high-cost operation. Thus, solid-state-laser media that have a high gain in the UV region for high efficiency, a small-sized system for easy handling and low cost operation are suitable.

UV-high-peak-power laser systems use solid-state-gain media have been researched extensively. However a new solid-state laser medium applicable in the UV region for high-peak-power lasers requires further research. Although we have successfully demonstrated laser oscillation experiments in the UV region using Ce^{3+} ion-doped fluoride-crystal laser media, such as Ce:LiCAF, $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$ (Ce:LiSAF), and $\text{Ce}^{3+}:\text{LuLiF}_4$ (Ce:LLF), not all solid-state laser media in the UV region have been researched. Because laser oscillation trials for new materials sometimes yield misleading information due to either restricted optical qualities of new materials or imperfect laser cavity alignment, laser gain evaluation methods are required to estimate the potential of the laser media.

A pump and probe measurement has been one of the methods for evaluating both the unknown gain and the loss properties of a potential laser medium. This method requires a light source for a probe for at least one sample medium. However, preparing probe light at the proper wavelength throughout the required time scale has been the primary technical difficulty in this method for a transient gain or loss evaluation. Because a light source with a broad spectrum is required in the measurement of a medium with a broad gain property at unknown wavelength, the development of a new method that can solve this problem is strongly required in the research for a broad-band gain medium in the UV region for generation of ultrashort pulses.

We developed a pump and probe scheme which is capable of evaluating the gain properties of potential laser materials without using lasers as the probe light source. The scheme employs two samples for measurement of a laser medium. Both media are simultaneously excited. Fluorescence emission from one of the media is collected and focused onto the other laser medium as probe light with a pair of lenses. Then a sample medium amplifies or absorbs the probe light while the probe light propagates in the sample medium. The amplified probe light is finally collected with a lens and acquired with a streak camera through a spectrograph as an image showing wavelength and a time axis. The image includes fluorescence intensity from the sample medium that amplifies the probe light, which is required to subtract the fluorescence-intensity image acquired with no probe light incident from the image of amplified probe fluorescence. An increase (decrease) from the subtracted image and the probe fluorescence image light means amplification (absorption), i.e., gain (loss) of

the sample medium. The subtracted image includes information about the spectrum and time. Inserting half-wave plates and polarizers between the two sample media is also useful for obtaining information about gain polarization dependence.

Using this pump and probe method, we obtained the gain properties of new ultraviolet (UV) laser crystals, Ce:LiCAF, Ce:LiSAF and $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSr}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{AlF}_6$ (Ce:LiSCAF), to evaluate their bandwidth and to select which a gain medium has the most potential for CPA laser systems in the UV region. As a result, we found that they have broad-band gain in the UV region and polarization dependence properties. Because of its broad-band gain spectrum, the resistance to UV irradiations and its large size with high quality, the Ce:LiCAF crystal was most the suitable.

We have successfully demonstrated a CPA laser system in the UV region for the first time using the Ce:LiCAF crystal. The four-pass amplifier had a 370-time gain and delivered 6 mJ pulses at 290 nm wavelength. After dispersion compensation, output pulses were compressed down to 115 fs. Future scaling of this Ce:LiCAF CPA laser system will open up a new category of high-peak-power lasers in the UV region.

In conclusion, we developed a new pump and probe scheme. We have applied this newly developed, two-crystal, pump and probe scheme to evaluate the gain properties of new laser media in the UV region, Ce^{3+} ion-doped fluoride crystals. This method indicated that the crystals have broad gain spectra which can be attractive for ultrashort pulse amplification in the UV region. The first CPA using the Ce:LiCAF crystal in the UV region was continued on the basis of the result of the gain evaluation. This method is also attractive for a gain spectrum measurement in various wavelength regions; it is not necessary to prepare a laser oscillator as the probe light source and made possible acquiring a gain spectrum and a decay curve with simple measurements. This method can be applied to other prospective laser materials to evaluate gain properties.

1. 序論

1.1 背景と本研究の意義

1970年代より、波長可変固体レーザーのためのレーザー媒質の探索が始まった。Ti:Al₂O₃ (チタンサファイア)やCr³⁺:LiSrAlF₆ (Cr:LiSAF)に代表される固体レーザー媒質が開発された。それらは、主として赤外領域で発振するものであった[1, 2]。また、Cr:LiSAF結晶と構造が同じで、性質も似ているCr³⁺:LiCaAlF₆ (Cr:LiCAF)も、赤外領域のレーザー媒質として報告された[3]。しかし、Cr:LiCAFの母結晶であるLiCaAlF₆(LiCAF)結晶は、紫外領域においても優れた透過特性を持つため紫外レーザーの母結晶としても応用が可能なことが見出され、3価のセリウムイオンがドープされた紫外波長可変レーザー媒質、Ce³⁺:LiCaAlF₆ (Ce:LiCAF)としても注目を集めている[4-6]。また、LiCAF結晶は、レーザー媒質の母結晶としてだけでなく、その紫外光に対する特性もまた注目すべき点がある。紫外固体レーザー媒質の母結晶として用いられた場合、その励起光源であるNd:Y₃Al₅O₁₂ (Nd:YAG)レーザーの4倍波(波長266 nm)の強い照射に対しても劣化が見られないからである。光リソグラフィ技術で用いられる露光装置を構成する光学材料は透過特性と紫外光に対する耐性も求められるため、新しい紫外光学材料としての可能性を探求することも非常に意義深い。東北大学金属材料研究所福田研究室との共同研究により、大きな高品質のフッ化物結晶が育成可能となったことも注目すべき点である。

紫外領域では可視領域と比べて、1つの光子が持つエネルギーが大きい、また回折による影響が小さいため空間分解能が高いという特徴がある。したがって、紫外領域でこれらの特徴を有効に活用する技術が、工業、化学、生物、環境分野や光メモリなどの光学応用機器のために求められている。しかし、この技術は可視や赤外の波長領域に比べると歴史が浅く、十分に全ての紫外光の特徴を生かしているとは言えない。その主要な原因は、光源と光学素子の選択肢の少なさである。光源として、実用上広い範囲で利用できるのは、高いエネルギー密度を持っているレーザー光源であり、紫外領域のレーザー光源としては、これまでエキシマレーザーが知られている。しかし、エキシマレーザーは装置が大きい、ランニングコスト、寿命などの点からも多くの問題をもっている。このことが紫外レーザー光源の応用分野を制限している。そこで、固体レーザー媒質を用いた、安定動作、小型で、低ランニングコストである紫外の固体レーザー光源による高出力紫外レーザーの実現が強く必要とされている。セリウムイオンを添加したフッ化物結晶は紫外領域における最も有力な固体レーザー媒質の1つである。そして、紫外光学材料という観点から、LiCAF結晶は真空紫外領域までの短い波長まで光を透過するという報告があり、その点からも有望視されている[7]。現在でも、真空紫外光源であるF₂レーザー(波長157 nm)においては、フッ化カルシウムが紫外光学材料として用いられているが、その紫外光に対する耐性などの点からも、新しい紫外光学材料が求められている。この理由に加えて、複数の光学材料の利用が紫外領域での光学系の設計の自由度に大きく貢献する点からも重要である。

Ce³⁺イオンを添加したフッ化物結晶は、広帯域な利得バンド幅を持っているこ

とが知られている。この特長を生かした紫外における超短パルス発生の可能性が示唆されてきた。超短パルス発生が実現すれば、その応用範囲は多岐に渡り、このフッ化物結晶の潜在能力を示すことができるであろう。しかし、この媒質を用いたレーザー発振は報告されてきたが、超短パルス発生はこれまで報告が無かった[8]。レーザー媒質の利得分布を効率的で精度良く測定できる方法が開発されれば、 Ce^{3+} イオンを添加した何種類かのフッ化物結晶の利得分布を測定し、その結果から超短パルス発生に適した結晶を選び出し、その利得特性に合わせた増幅器を構築することができるであろう。

本研究では Ce^{3+} イオンを添加したフッ化物結晶を用いたチャープパルス増幅法 (chirped pulse amplification, CPA) による高出力な紫外レーザー光源の実現が検討された。CPA とは高ピークパワーの超短パルス光を発生することができる有効な方法である[9]。具体的には、位相のそろったパルスを回折格子やプリズムなどの分散素子によって正の分散をパルスに与えて、その時間的なパルス幅を広げ、一旦、パルス光のピーク強度を下げた後に増幅した後に、再び回折格子やプリズムなどの負分散の素子を用いてパルス光の分散補償による時間幅を圧縮することにより、光学部品の損傷無く高ピークパワーの超短パルス光が得られる手法である。実際にチタンサファイア結晶を用いた CPA レーザーシステムにより TW レベルのピーク出力が実現可能となっている。近年、超短パルスレーザーの応用は研究レベルからより実用的な分野へと移行している。応用される分野は、超高速分光、光通信、計測、微細加工、高強度光電場発生、高密度光メモリなど多岐にわたっている。しかし、今日の超短パルスは、チタンサファイア結晶を発振、増幅媒質として用いたシステムによるものがほとんどであり、その発振波長は赤外領域に限られてきた。従って、 Ce^{3+} イオンを添加したフッ化物結晶を用いることにより実現する紫外領域での CPA レーザーシステムは、超短パルスの応用分野を大きく展開させる可能性を秘めている。

上記の CPA レーザーシステムのためには、レーザー媒質の持つ広帯域な利得特性や時間特性の情報を得るために評価方法が不可欠である。しかし、これまでこのような手法は無かったため、 Ce^{3+} イオン添加のフッ化物結晶の利得分布も詳細に調査されなかったのである。我々は、CPA を利用して紫外超短パルス発生を確実にを行うために、それに先立ち、 Ce^{3+} イオン添加フッ化物結晶の利得特性を詳細に評価する方法を開発することにした。

現在、主に行われているレーザー媒質の利得評価法であるポンプ・プローブ法では、広範囲のスペクトル領域の利得を測定するのが困難である。我々は、これを元にレーザー媒質の簡易で確実な特性評価法として 2 つのレーザー媒質とストリークカメラを用いた時間分解ポンプ・プローブ法を開発した。この方法により Ce^{3+} イオン添加フッ化物結晶のレーザー媒質の評価を簡易かつ信頼性高く行うことが検討された。広帯域な利得が示されれば、最も広帯域な利得を持つレーザー媒質を選択して紫外超短パルスの出力が実現できるであろう。

本論文は広い利得スペクトル特性を簡易に測定する方法の開発と、その利得情報を元にして実現した紫外超短パルスの発生に関する研究を述べたものである。

1.2 固体紫外レーザー媒質の歴史

1960年にMaimanがルビーを用いて初めてレーザーを発振させて以来、レーザーは今日まで著しく発展してきた。数々のレーザー媒質の開発により出力の向上や発振波長領域の拡大が実現されてきた。そして、1960年代半ばに色素やカラーセンターを用いた波長可変レーザーが開発された。1986年にはP. F. Moultonによってチタンサファイアレーザーが開発された[1]。これは今までにない超広帯域で発振可能なレーザー媒質であり、その超広帯域を生かした超短パルスの発生にも用いられた。チタンサファイアレーザーは赤外領域で発振するが、紫外領域において波長可変で発振する固体レーザー媒質の開発は遅れた。チタンサファイアレーザーなどの出力を波長変換して紫外領域で利用する方法もあるが、その変換効率は低く実用的ではなかった。紫外領域で直接発振するレーザーとしては、エキシマレーザーがあったがこれは比較的高出力化し易い。しかし、その波長可変性、集光性、大きさや経済面から不利な点が多いため、光リソグラフィなど一部の分野の光源としか現在用いられていない。これらのエキシマレーザーの不利な点の無い全固体の紫外波長可変レーザーが分光などの分野で強く求められている。

紫外波長可変レーザーは、科学技術の様々な分野においてより重要なツールとなってきた。最も重要な応用分野は、環境センシング、半導体プロセス、マイクロマシン、光通信や医学、生体のリアルタイムモニタリングである。中でも大気のリモートセンシングの分野において紫外領域で発振する波長可変レーザーは、欠かすことができない重要な光源となっている[10]。これは、差分吸収ライダー(DIAL: Differential Absorption Lidar)が気体成分の測定手法として確立しているからである[11]。この測定方法では、測定の対象となる物質に対して吸収の大きな波長と吸収の小さな波長の2つの波長を用いる。2つの光の減衰量を測定することで測定対象の物質の濃度分布が求められる[12]。そして、それらの波長と近い光での減衰量との比より、測定の対象となる物質以外の原因による散乱などの影響を打ち消すことができるのである。このための光源として波長可変レーザーを利用すると、1台のレーザー装置で複数の波長を利用することができるため装置の小型化や信頼性を向上させることができる。そして、大気中に放出される有害物質の多く(二酸化硫黄(~ 300 nm)一酸化窒素(~ 227 nm)、水銀蒸気(253.652 nm)、塩素(~ 300 nm)、トルエン(255-277 nm)、ベンゼン(230-270 nm))が紫外領域に吸収のピークを持つので、紫外の波長可変レーザーが非常に有効なのである[13-15]。また、有害な紫外線を吸収して、地上の生物を守るオゾン層は、280-310 nmの波長が用いられる。これまで、対流圏、成層圏におけるオゾンの観測のために差分吸収ライダーの光源としてエキシマレーザーやNd:YAGレーザーの4倍高調波の誘導ラマン散乱、あるいは色素レーザーの第二高調波などが光源として用いられてきた。NASAにより、オゾンラジカルの地球上の分布を解析するために波長可変紫外レーザーを光源とした差分吸収ライダーが航空機に搭載された例がある[11]。このときの紫外DIALシステムでは、2台のNd:YAGレーザーの2倍高調波による励起で発振する2台の波長可変色素レーザーが用いられた[16, 17]。この様に差分吸収ライダーは、地上だけでなく航空機に搭載されたり、将来は宇宙で用いられたりする

可能性があるために、装置の小型化、信頼性と共にメンテナンス性を向上させることが強く求められている。

波長可変レーザー媒質のもう 1 つの大きな特徴は、超短パルスの発生や増幅に適しているという点である。実現可能な超短パルスの時間幅は、利得帯域幅に反比例するからである。既にチタンサファイア結晶や色素などの広帯域な利得を持つレーザー媒質により、フェムト秒パルス発生が実現しており[18]、現在は研究対象から既に実用応用分野にまで普及しつつある。超短パルスレーザーの応用される分野は、超高速分光、通信、計測、微細加工、高強度光電場発生、高密度光メモリなど多岐にわたっている。しかし、今日の超短パルスは、チタンサファイア結晶を発振、増幅媒質として用いたシステムによるものがほとんどであり、その波長領域は赤外領域に限られてきた。しかし、近年材料加工や高次高調波の発生、プラズマ中での強電場発生などの分野で紫外領域での超短パルス発生が望まれてきている。現在まで紫外領域における高ピーク出力のパルスを得るために主に 2 つの方法が行われてきた。そのうちの 1 つの方法は、チタンサファイア増幅器の非線型変換によるものである[19, 20]。しかし近赤外の超短パルス光からの波長変換による紫外光出力は 3、4 倍高調波発生のための非線型結晶の大きさや波面の歪曲が原因となり、数 mJ 程度の出力しか得られない。もう 1 つの方法は、KrF エキシマレーザー増幅器により、直接波長 248 nm のパルスを増幅する方法である[21-24]。この場合、非線型変換による前記のような制限は無いが、その利得帯域が制限となってしまう。東京大学物性研究所渡辺研究室で行われた KrF エキシマ増幅器を用いた場合[14]、最も短いパルス幅は、その 2.2 nm の利得バンド幅により 29 fs になると見積もられる。

以上のレーザー媒質と比較すると、ロシアの M. A. Dubinskii らにより開発された固体紫外レーザー媒質、Ce:LiCAF 結晶や Ce:LiSAF 結晶は、従来の Q スイッチ動作の Nd:YAG レーザーの 4 倍波で励起が可能であり、これらの媒質は波長 290 nm 付近を中心に幅広い利得バンド幅を持っていることがレーザー出力の波長チューニング曲線から示唆された、これはフーリエ限界で 10 fs 以下のパルス幅に相当する (Fig. 1.2.1 参照)。さらに、Table 1.2.1 に様々な固体レーザー媒質を示したが、この中でも Ce:LiCAF は 115 mJ/cm^2 と比較的高い飽和フルエンスを持っている利点もある[16]。Ce:LiCAF 結晶の蛍光寿命は 25 ns という報告があるが、この長さはチタンサファイア(蛍光寿命 3.2 μs)の様に再生増幅器を構築するには短すぎる。しかし、 $6.0 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ の誘導放出断面積 (チタンサファイアでは、 $3.0 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$) により高利得のマルチパスの増幅器を設計するには十分な長さである[16]。実際に 1997 年に分子科学研究所分子制御レーザー開発研究センター放射光同期レーザー開発研究部における実験で、小さい結晶($5 \times 5 \times 10 \text{ mm}^3$)を用いたマルチパスの Ce:LiCAF 増幅器を構築し、主共振器からのパルス幅 1 ns のパルス光を増幅して、14 mJ の出力と 18% のエネルギー変換効率を得られている[17]。従来でも最大で直径 1 cm の結晶が入手可能であったが、これは高ピークレーザー増幅には十分な大きさではなかった。将来的に、テラワット (TW) Ce:LiCAF CPA レーザーシステムに用いるためには、より大きいレーザー結晶が必要となる。

ここで、現在までに行われてきた紫外固体レーザー媒質の開発を振り返り、

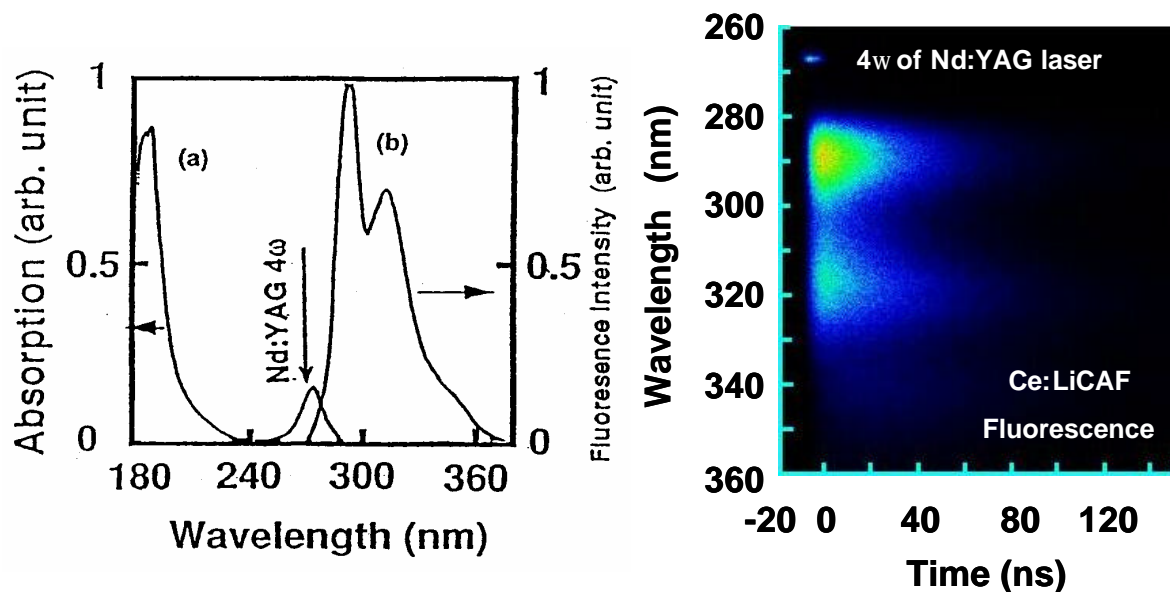


Fig. 1.2.1 M. A. Dubinskiiらにより開発されたCe³⁺:LiCaAlF₆の光学特性。QスイッチNd:YAGレーザーの4倍高調波で励起が可能であり、特に波長281から315 nmに及ぶ広い蛍光スペクトルを持っていることが示された[16]。

Table 1.2.1 今までの実験から見積もられたレーザー媒質の超短パルス発生のための特性。Ce:LiCAFが広い利得バンド幅と高い飽和フルエンスから超短パルス発生に適した媒質であることがわかる。

Laser media	E_{sat}	Du	t_p	I_p
Ti:Sapphire (0.7~1.1 mm)	0.7 J/cm²	133 THz	2.3 fs	~304 TW/cm²
Ce:LiCAF (280~320 nm)	0.1 J/cm²	129 THz	2.4 fs	~42 TW/cm²
Ce:LLF (305~340 nm)	0.05 J/cm²	103 THz	3.1 fs	~16 TW/cm²
Nd:YAG (1064 nm)	0.4 J/cm²	10 GHz	40 ps	~10 GW/cm²

LiCAF 結晶がフッ化物結晶の中でも、優れた特性を持つことを再確認する。波長可変レーザーのために振動準位を持つ結晶の開発は、1970年代始めより続けられてきたが、レーザー媒質として成功しているチタンサファイア[1]やアレキサンドライト[25]や最近のCr:LiCAF [3]とCr:LiSAF [2]のような振動準位材料は、どれも近赤外領域(波長:700-1000 nm)において発振するものであった。紫外領域におけるレーザー媒質は、ワイドバンドギャップフッ化物結晶、YLiF₄ (YLF) [26]、LaF₃ [27]、LuLiF₄ (LLF) [28, 29]、LiCAF [4-6]やLiSAF [30, 31]中の遷移金属イオンでの5d-4f遷移に基づく固体紫外活性媒質を直接励起することで実現する方法が、最も信頼性があり効率的に波長可変、または紫外超短パルス発生を可能にすると考えられてきた。実際、この事実は1977年に純粋に分光学的な見地より報告され、その後D. J. Ehrlichらにより紫外領域においてCe³⁺イオン [26, 27] が、R. W. Waynantにより真空紫外領域においてNd³⁺イオン [32] が確認された。1979年に、K. H. YangとJ. A. Delucaは、紫外および真空紫外領域で直接発光する波長可変レーザーを実現する方法を提案した [33]。粉末のCe³⁺:LaF₃とCe³⁺:LuF₃のサンプルが、Hgランプに挿入されて波長253.7 nmのバンドパスフィルターを通過した光によって励起され、広帯域な紫外の蛍光がCe³⁺:LaF₃ (276-312 nm)とCe³⁺:LuF₃ (288-322 nm)から観測された。その後、Ce³⁺:YAGが5d-4f固体波長可変レーザー用のモデル系として調査されたが、Ce³⁺:YAGにおいてレーザー発振は確認できなかった。この材料ではその蛍光波長において強いESA(Excited State Absorption, 励起状態吸収)が確認された。このESAの影響によりレーザー発振は完全に阻害された[34]。

5d-4f遷移を持つレーザーは、Ce³⁺:YLF₄ (Ce:YLF)というレーザー媒質によって初めて実現された[26]。Ce³⁺イオンは、紫外領域において最も将来性がある付活剤ということに注目すべきである。しかし、多くのCeにより活性化された材料の研究[35, 36]にも関わらず、1992年までの発見は、わずか2つのレーザー媒質しか明らかにしなかった。1979年に、D. J. Ehrlichらは、3価のイオン化した希土類金属ドープ結晶、Ce:YLFを光学的に波長249 nmのKrFエキシマレーザーで励起して325.5 nmで発光することによる最初の誘導放出の観測を報告した。しかし、Ce:YLFレーザー発振は、いくつかの問題点により実現されなかった。それらの問題点は、出力の飽和やカラーセンターの発生であった。したがって、これらの実験は歴史的な意義があるものの媒質の劣化により実用的に用いることは不可能であった。1980年に同じグループが、光励起のCe³⁺:LaF₃レーザーについて述べた[27]。このレーザー媒質の問題点は、低い出力と高い発振閾値であるが、これらは結晶成長における初期の低品質によるものであると言える。しかしながら、この実験を追試できないのでレーザー媒質としてCe³⁺:LaF₃結晶の性質について解説することは難しい。

1992年に、ロシアのM. A. Dubinskiiらは、KrFエキシマレーザーによる励起が可能なレーザー媒質、Ce³⁺:LuLiF₄ (Ce:LLF)結晶を報告した [4, 5]。この結晶は、Ce:YLF結晶とほとんど同じ光学的な特徴を持っていた。しかし、Ce:LLF結晶は、より劣化しにくい性質をもっていたので実用上ではより有望であった[4, 5]。実際に、上記の分子科学研究所のグループはCe:LLF結晶をKrFエキシマレーザーで励起することで、27 mJの高パルスエネルギーを出力することを報告し

た。1993年には、M. A. DubinskiiらはNd:YAGレーザーの4倍波で励起可能なCe:LiCAF結晶を報告した。この結晶に関しては、全く劣化は観察されなかった[4-6]。さらに、1994年にCe:LiSAF結晶が報告された。この結晶もまたNd:YAGレーザーの4倍波で励起可能であった[21, 22]。この結晶は、Ce:LiCAF結晶と似たレーザー特性を持っていた。これらの新しいCe³⁺イオン添加によるレーザー媒質が報告されたため、紫外波長可変レーザーに関する研究が再び人気を博した。全ての新しいCe³⁺イオン添加の結晶は、特に超短パルスの発生や増幅に適した紫外域での広帯域な利得を持っている。Fig. 1.2.2は、既存の5つのCe³⁺イオン添加フッ化物レーザー媒質による波長可変領域を示している。

特に、LiCAF結晶は近年大きな高品質結晶が東北大学金属材料研究所においてCzochralski法を用いて育成可能となり(Fig. 1.2.3, 1.2.4)、Ce³⁺イオンを添加した紫外レーザーの高出力化に対応した結晶が期待されている[37]。以上で述べたように、フッ化物結晶はその優れた紫外光特性により紫外レーザー媒質としての大きな発展の可能性を秘めている。レーザー媒質としての地位が確立すれば、現在の研究段階から実用段階へと発展することも十分に在り得る。

1.3 参考文献

- [1] P. F. Moulton, *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 125 (1986).
- [2] S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway, and H. W. Newkirk, *J. Appl. Phys.* **66**, 1051 (1989).
- [3] S. A. Payne, L. L. Chase, H. W. Newkirk, L. K. Smith, and W. F. Krupke, *IEEE J. Quantum Electron.* **24**, 2243 (1988).
- [4] M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Y. Abdulsabirov, and S. L. Korableva, *OSA Proceedings on Advanced Solid-State Lasers*, Albert A. Pinto and Tso Yee Fan, eds. (Optical Society of America, Washington, D.C.) **15**, 195 (1993).
- [5] M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Y. Abdulsabirov, and S. L. Korableva, *Laser Phys.* **3**, 216 (1993).
- [6] M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Y. Abdulsabirov, and S. L. Korableva, *J. Mod. Opt.* **40**, 1 (1993).
- [7] M. Sakai, Z. Liu, T. Kozeki, H. Ohtake and N. Sarukura, *CLEO/Pacific Rim*, WL4 (1999).
- [8] N. Sarukura, Z. Liu, H. Ohtake, Y. Segawa, M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, S. L. Korableva, A. K. Naumov, and V. V. Semashko, *Opt. Lett.* **22**, 994 (1997).
- [9] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, *Opt. Lett.* **16**, 42 (1991).
- [10] G. J. Megie, G. Ancellet, and J. pelon, *Appl. Opt.* **24**, 3454 (1985).
- [11] E. V. Browell, in *Advanced Solid-State Lasers*, OSA Technical Digest, paper MA1, 2 (1995).
- [12] R.M. Schotland: *Proc. 3rd Symp. on Remote Sensing of Environment*, 215 (1964).
- [13] H. Edner, P. Ragnarson, S. Svanberg, E. Wallinder, A.D. Liso, R.Ferrara, and B.E. Maserti, *J. Geophys. Res.* **97**, D4, 3779 (1992).
- [14] H. Edner, K. Fredriksson, A. Sunesson, and W. Wendt, *Appl. Opt.* **26**, 3183 (1987).
- [15] M.J.T. Milton, P.T. Woods, B.W. Joliffe, N.R.W. Swann, and T.J. McIlveen, *Appl. Phys.* **B55**, 41 (1992).
- [16] E.V. Browell, A.F. Carter, S.T. Shipley, R.J. Allen, C.F. Butler, M.N. Mayo, J.H. Siviter, Jr., and W.M. Hall, *Appl. Opt.* **22**, 522 (1983).

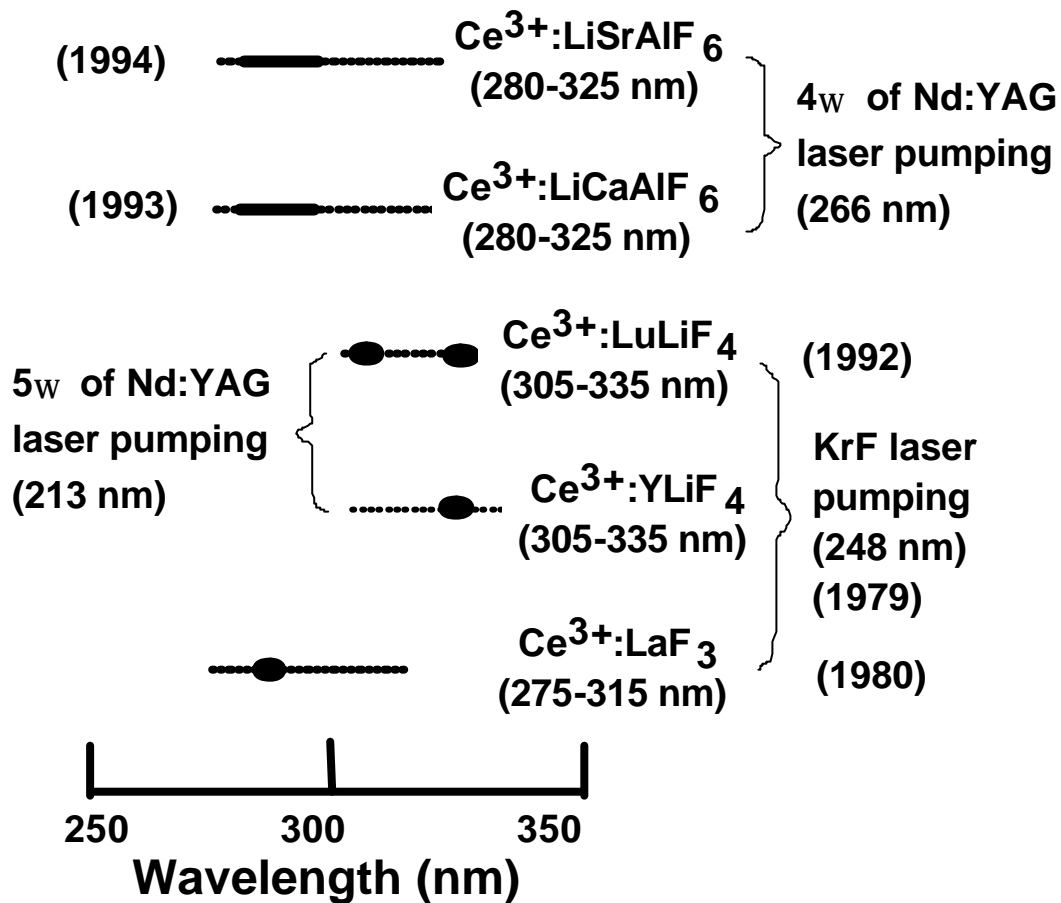


Fig. 1.2.2 現在までに報告された5種類のCeイオン添加による紫外フッ化物レーザー結晶

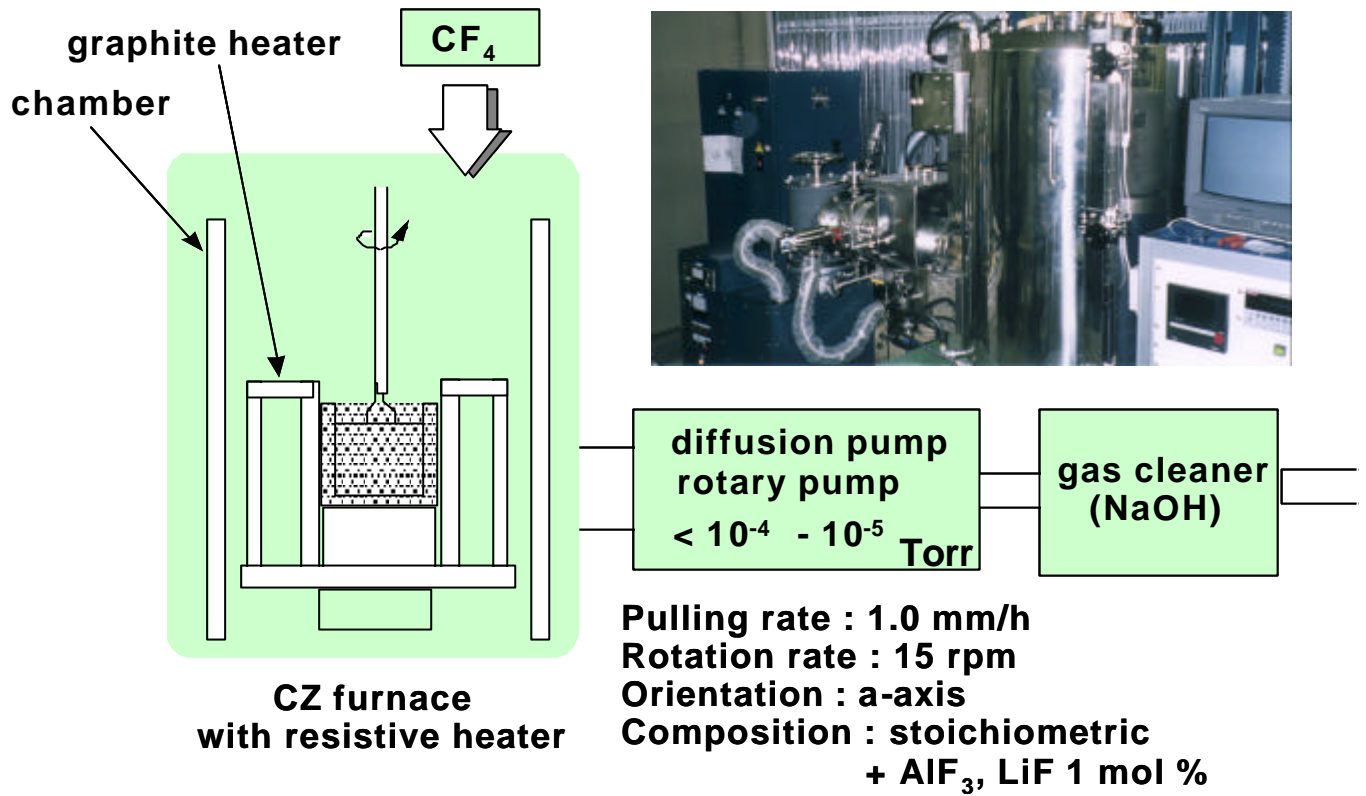


Fig. 1.2.3 東北大学におけるCzochralski 法のための結晶育成装置

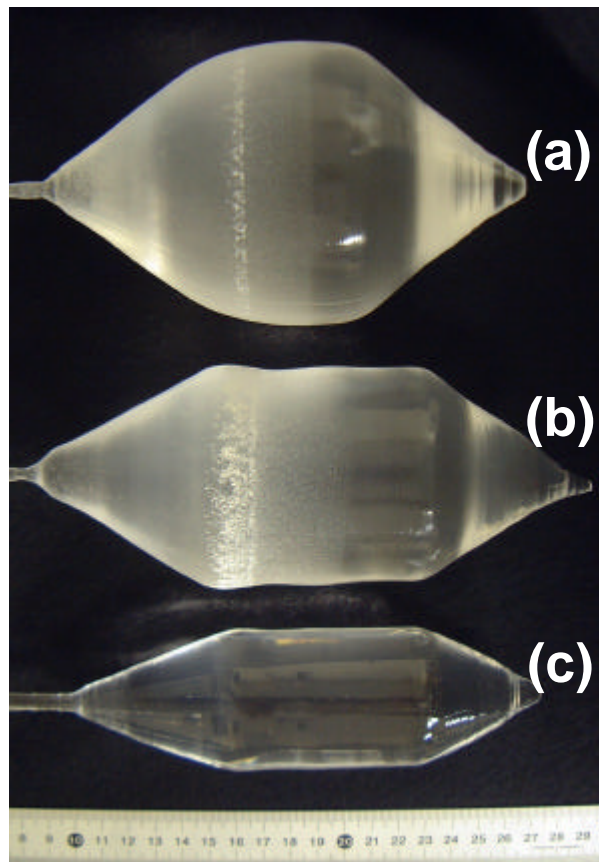


Fig. 1.2.4 東北大学で育成された大きい高品質なLiCAF結晶。直径 (a) 4 インチ, (b) 3インチと (c) 2インチのLiCAF結晶。

- [17] E.V. Browell, E.F. Danielsen, S. Ismail, G.L. Gregory, and S.M. Beck, *J. Geophys. Res.* **92**, D2, 2112 (1987).
- [18] N. Sarukura and Y. Ishida, *Opt. Lett.* **16**, 153 (1991).
- [19] C. P. J. Barty, T. Guo, C. Le Blanc, F. Raksi, C. Rose-Petruck, J. Squire, K. R. Wilson, V. V. Yakovlev, and K. Yamakawa, *Opt. Lett.* **21**, 668 (1996).
- [20] H. Wang, S. Backus, Z. Chang, R. Wagner, K. Kim, X. Wang, D. Umstadter, T. Lei, M. Murnane, and H. Kapteyn, *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 1790 (1999).
- [21] Y. Nabekawa, K. Kondo, N. Sarukura, K. Sajiki and S. Watanabe, *Opt. Lett.* **18**, 1922 (1993).
- [22] Y. Nabekawa, Y. Kuramoto, T. Sekikawa, and S. Watanabe, *Opt. Lett.* **22**, 724 (1997).
- [23] S. Szatmari, *Appl. Phys. B*, **58**, 211 (1994).
- [24] K. Boyer, J. W. Longworth, A. McPherson, T. Nelson, P. Noel, W. A. Schroeder, C. K. Rhodes, S. Szatmari, and G. Marowsky, *Appl. Phys. B*, **64**, 643 (1997).
- [25] J. C. Walling, O. G. Peterson, H. P. Jenssen, R. C. Morris, and E. W. O'Dell, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-16**, 1301 (1980).
- [26] D. J. Ehrlich, P. F. Moulton, and R. M. Osgood, Jr., *Opt. Lett.* **4**, 184 (1979).
- [27] D. J. Ehrlich, P. F. Moulton, and R. M. Osgood, Jr., *Opt. Lett.* **5**, 339 (1980).
- [28] M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, S. L. Korableva, A. K. Naumov, and V. V. Semashko, 18th International Quantum Electronics Conference, OSA Technical Digest (Optical Society of America, Washington, D.C. 1992), Paper FrL2, 548 (1992).
- [29] M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, S. L. Korableva, A. K. Naumov, and V. V. Semashko, *Laser Phys.* **4**, 480 (1994).
- [30] J. F. Pinto, G. H. Rosenblatt, L. Esterowitz, and G. J. Quarles, *Electron. Lett.* **30**, 240 (1994).
- [31] C. D. Marshall, S. A. Payne, J. A. Speth, W. F. Krupke, G. J. Quarles, V. Castillo, and B. H. T. Chai, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2054 (1977).
- [32] R. W. Waynant and P. H. Klein, *Appl. Phys. B* **28**, 205 (1982).
- [33] K. H. Yang and J. A. Deluca, *Appl. Phys. Lett.* **31**, 594 (1977).
- [34] W. J. Miniscalco, J. M. Pellegrino, and W. M. Yen, *J. Appl. Phys.* **49**, 6109 (1978).
- [35] R. R. Jacobs, W. F. Krupke, and M. J. Weber, *Appl. Phys.* **33**, 410 (1978).
- [36] D. S. Hamilton, in *Tunable Solid State Lasers*, Berlin: Springer, 80 (1985).
- [37] K. Shimamura, S. L. Baldochi, I. M. Ranieri, H. Sato, T. Fujita, V. Mazzocchi, C. B. R. Parente, C. O. Paiva-Santos, C. V. Santilli, N. Sarukura and T. Fukuda, *J. Crystal Growth*, **223**, 383 (2001).

2. ポンプ・プローブ法によるレーザー媒質の利得評価

2.1 レーザー媒質の利得と増幅

2.1.1 レーザー媒質の利得測定とは

レーザーとは、Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation (誘導放出を利用した光の増幅器)の頭文字から命名されたことからわかるように、光が増幅される現象を利用したものの1つである。より具体的に説明すると、共振器内の利得を持つ媒質中を光が伝播することにより、媒質によって光が増幅され、強度が増すことによって共振器における散乱、回折、反射や吸収による損失に打ち勝ってレーザー発振が実現するのである。従って、レーザーの特性の大きな部分を占めるのが利得を持つ媒質であり、それ故、レーザー媒質と呼ばれるのである。上記のような理由によって、レーザー媒質の利得の特性に関する情報を得ることは、その媒質を用いたレーザーの発振や増幅を行う上で、大変重要なことである。利得のあるレーザー媒質では、その利得が最も大きくなる波長で、最も効率良くレーザー発振が可能となる。また利得が結晶など固体の場合、利得に偏光依存性が存在する場合は、その情報も重要であると考えられる。

このレーザー媒質の利得の評価を行うための簡単で信頼性の高い方法が、今まで開発されておらず、レーザー媒質の開発の阻害要因となっていた。利得分布が未知のレーザー媒質では共振器を構築するのは困難であり、また開発初期のレーザー媒質は、品質が低くまた安定していないので測定の再現性が低く、包括的な利得のスペクトル形状が得られないからである。正確な利得情報が得られないので、不正確なデータを元にレーザー媒質の開発が進めば、潜在的にレーザー発振可能な媒質でも発振が確認できないため、レーザー媒質としての開発が中止されてしまうこともあるであろう。そこで、現在レーザー媒質の正確な利得を広範囲な波長領域で求めることができる方法が求められている。

レーザーの高出力化の観点から検討する場合、単位時間当たり高出力なレーザー出力が可能な媒質に求められる性質は、大きな飽和フルエンス(レーザー媒質において増幅の飽和が起こる目安)と広い利得のバンド幅である。レーザー媒質の利得バンド幅とその媒質を用いて得られる最短のパルス(フーリエ限界パルス)幅は、お互いにフーリエ変換で関係づけられるので、利得バンド幅は最短のパルス幅に反比例するからである。これまでの利得評価法は、幅広いレーザー媒質の利得測定の場合、調査したい波長ごとに測定するために時間がかかり容易でなく、不連続な利得の分布しか得られなかった。また新開発の材料は不純物などの問題から耐性が低く、励起光や吸湿性による劣化の問題の見地からも利得測定が短時間に行われるのが望ましい。

以上をまとめると、現在のレーザー媒質の利得測定法は不十分であり、広帯域な利得を持つレーザー媒質の評価と言う観点からも、レーザー媒質利得評価の方法は、短時間で簡易かつ正確に広い波長領域において連続的な利得の分布が測定可能であるのが望ましい。

2.1.2 誘導放出と増幅

ここで、光が増幅される機構について簡単に説明しておく。原子（分子）が励起状態から基底状態に遷移して光を放出する過程は、自然放出 (spontaneous emission) と誘導放出 (stimulated emission) という2つの過程がある。自然放出は、寿命とともに励起した原子（分子）が下準位へと遷移することによって光子を発生することである。放出される光子はランダムな方向で、互いの位相に関係は無く発生する。この自然放出により発生する光の周波数 ν は、次の式で決定される。

$$\nu = \frac{E_2 - E_1}{h} \quad (2.1.1)$$

ここで、 E_2 は励起準位のエネルギー、 E_1 は下準位のエネルギー、 h はプランク定数である。そして、もう一方の原子（分子）の放出過程である誘導放出では、Fig. 2.1.1 の様に外部からの光子によって、励起状態にある原子（分子）から誘導されて光子が放出される。ここで、新たに放出された光は、外部からの光と同じ位相、波長、偏光状態および伝搬方向を持っている。従って、光が励起状態にある原子（分子）を含む物質を伝播することによって、その強度が増幅されるのである。この光の増幅現象を利用したものがレーザーであり、レーザーの発振やレーザー高出力の増幅器の動作原理となっている。

ここで、増幅率について説明する。入射光が媒質中を伝播することにより増幅されたときに、入射光の増幅前後での強度比を増幅率という。熱平衡状態では、原子や分子のエネルギー準位において粒子密度はボルツマン分布に従って存在し、エネルギー準位 E_2 、 E_1 における粒子密度 N_2 、 N_1 の比は

$$\frac{N_2}{N_1} = \exp\left(-\frac{E_2 - E_1}{kT}\right) \quad (2.1.2)$$

の式であらわされる。ここで、 T は温度である。熱平衡状態では、下準位の方が、粒子密度が高いため原子や分子に光が入射しても誘導放出するより吸収する方が多い。従って、熱平衡状態にある媒質は、全体として入射光は吸収される。従って、光を誘導放出によって増幅するためには、上準位の方が密度の高い反転分布（負温度）を実現する必要がある。このために、増幅媒質は、光、放電や電流による励起によって媒質にエネルギーを与える（ポンピング）必要がある。増幅媒質の増幅係数 g は、その媒質の誘導放出断面積 σ と反転分布密度 N ($=N_2 - N_1$) により、次の式で表される。

$$g = \sigma \cdot \Delta N \quad (2.1.3)$$

この増幅係数と増幅媒質の長さ l によって、入射光の増幅率 G が求められる。

$$G = \exp(g \cdot l) \quad (2.1.4)$$

入射光強度が低い場合は、増幅率は上の式に従うが（小信号利得）、高強度のレーザー増幅のような入射光強度が高い場合は誘導放出による反転分布密度の低下が無視できないため、この式には従わない。本研究のポンプ・プローブ法は、式 2.1.4 の式に従うように十分に入射光強度が低い範囲で行わなければならない点に注意する必要がある。

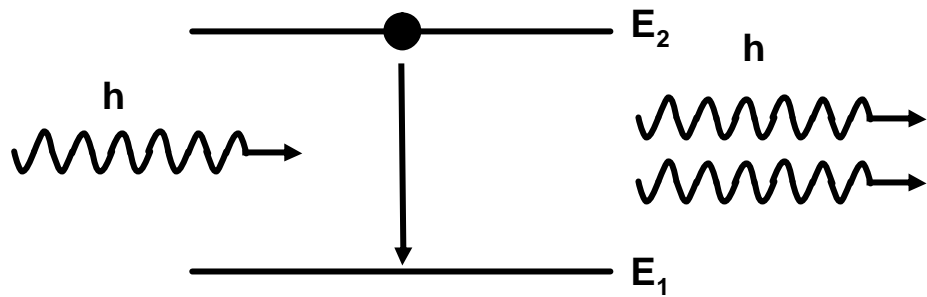


Fig. 2.1.1 誘導放出の模式図。外部からの光子によって、励起状態にある原子（分子）から誘導されて光子が放出される。ここで、新たに放出された光は、外部からの光と同じ位相、波長、偏光状態および伝搬の方向を持っている。

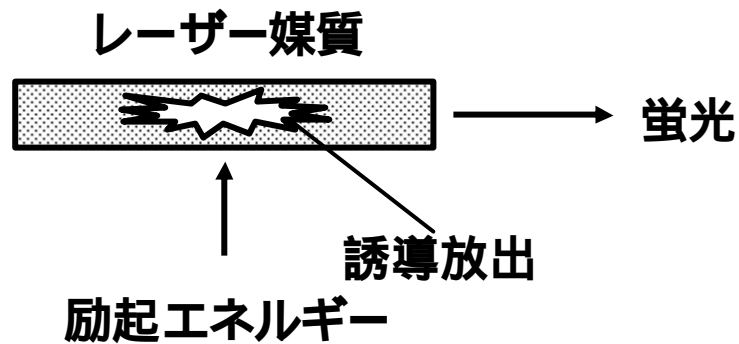


Fig. 2.1.2 利得のあるレーザー媒質に励起エネルギーを与え、媒質からの蛍光の強度を測定すれば、誘導放出による蛍光の増幅（自己増幅自然放射光ASE、Amplified Spontaneous Emission）が観測されるはずである。

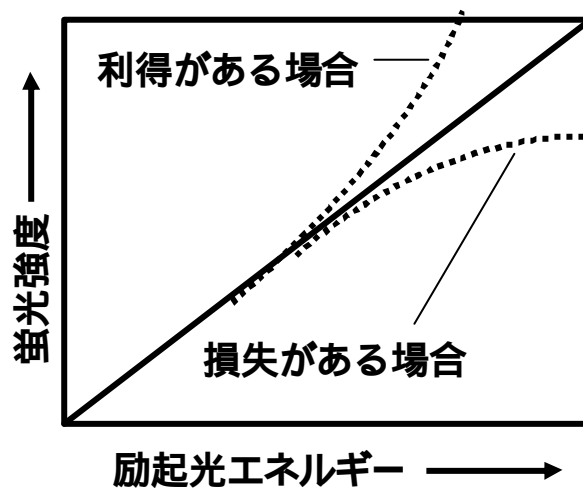


Fig. 2.1.3 媒質に利得があれば励起エネルギーに対して蛍光強度が、非線形に高くなる。

2.2 従来のポンプ・プローブ法

前にも述べた通り新しいレーザー媒質の開発は、その利得特性評価法が重要である。しかし、また 1 つの障害でもあるとされてきた。その理由は、レーザー媒質の適当な特性評価法がないために、媒質の特性評価によって製造工程への確実に迅速なフィードバックが、極めて困難であったからである。新しいレーザー媒質の開発が困難な主な理由は、新しい媒質によるレーザー発振実験において媒質の光学的な品質が十分でない事や不完全なレーザー共振器によって信頼性の低い情報しか得られない可能性があるからである。そのような場合、レーザー媒質の利得特性の評価が必要となる。以前行われた減衰法という利得評価法は、レーザー発振した状態で発振器内に減衰板を挿入して、発振を止める場合の閾値での減衰量からその媒質の利得を推定するという方法であるが、この方法ではレーザー発振が実現した場合についてのみ可能であるため、レーザー発振が確認された媒質の正確な利得係数を求めるためには適当な方法ではあるが、利得の波長分布が未知の媒質に対しては、レーザー共振器が構築できないので不適當であると言わざるを得ない。従って、レーザー発振が実現していないレーザー媒質では、共振器を必要としない方法でその利得特性が評価されなくてはならない。そこで、Fig. 2.1.2 に示すように共振器を用いないで利得のあるレーザー媒質に励起エネルギーを与え、媒質からの蛍光の強度を測定すれば、誘導放出による蛍光の増幅（自己増幅自然放射光 ASE (Amplified Spontaneous Emission)）が観測されるはずである。Fig. 2.1.3 のグラフで示されるように、媒質に利得があれば励起エネルギーに対して蛍光強度が非線形に高くなり、ESA があれば強度が飽和するはずである。しかし、この方法においても励起エネルギーが光の場合だと媒質への吸収の非線形性が生じることによる問題や増幅された光の集光性の低さによる問題があるため、評価法として信頼性が低いといわざるを得ない。

そこで、正しく利得・吸収特性を評価するために有効な手法としてポンプ・プローブ法が用いられてきたのである。ポンプ・プローブ法とは、ポンプ光の光パルスで試料を照射した後に、ポンプ光に比べて充分弱い光パルスをプローブ光として試料に入射し、試料透過後のプローブ光の強度や偏光状態あるいはスペクトル形状の変化を観測することで、試料の特性を観測する有力な方法の 1 つである。プローブ光に超短パルスを用いることで、高速な現象を時間的に分解して測定できるので、化学反応の解明など広い分野で利用されてきた[1]。ポンプ・プローブ法では、ポンプ光とプローブ光のパルスを異なる光源から精度良く同期させて発生させるか、1 つの光パルスをビームスプリッターなどで分離させて遅延光路を通してプローブ光として用いることで実現される。プローブ光の波長がポンプ光と同じ場合は、ポンプ光を分けたパルス光をそのままプローブ光として用いることができる。ポンプ光とプローブ光で異なる波長の光が必要になるときは、もう一台の異なる波長の光源を電気的な遅延を持たせて同期させて動作させるか、超高速現象の観測では、分離させた光を高調波発生、パラメトリック発生や誘導ラマン散乱などにより波長変換プロセスや白色光 (super-continuum) の発生が必要となる。本研究の目的のようなレーザー媒質の利得を評価する際は、励起光源とプローブ光源の 2 つの異なる波長の光源が必

要となる。2 台の独立した波長の異なるレーザー発振装置を用意して電氣的に同期させて用いるか、励起光源のレーザー光の一部を非線形光学結晶で波長変換などを行ってプローブ光として用いる方法が考えられる。

ここで、現在までに行われたポンプ・プローブ法を用いた実験について簡単に紹介する。最初の超短パルスを用いたポンプ・プローブ法を用いた実験は、Shelton と Armstrong によって最初に行われた[1]。この実験では、サンプルとして過飽和吸収体の透過率時間変化を、モードロック固体レーザーを光源として用いて測定した。この測定実験の概略図を Fig. 2.2.1 に示す。まず、レーザーからの強度の高いパルス光がポンプ光として、試料に入射される。ポンプ光が入射後にある遅延時間をもってビームスプリッターで分けられた低強度のパルス光がプローブ光として試料を透過し、検出器でその強度が測定される。プローブ光に与えられる遅延時間は、光路長を図中のプリズムの移動で可変であり、過飽和吸収体の透過率時間変化が求められる。

我々は、Fig. 2.2.2 に示されるようなモードロックレーザーをプローブ光源に用いた簡便なポンプ・プローブ法によるレーザー媒質の利得を既に測定している[2, 3]。この方法の利点は、背景の蛍光とパルス列の利得や吸収の変調が完全に分離することができる。モードロックレーザーの高繰り返しのパルス列をプローブ光源として用いることで、ポンプ用のパルスレーザーとの同期が不必要という特徴も持っている。今回、この方法を用いて $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSr}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{AlF}_6$ (Ce:LiSCAF) 結晶の利得が測定された。Ce:LiSCAF 結晶は、特性が未知の部分が多いレーザー媒質であり、Ce:LiCAF と Ce:LiSAF のそれぞれの良い点を持ち合わせることを期待されて開発された[4]。この結晶についての基本的な光学特性を調査した結果は、2.3.4 で述べられる。Ce:LiSCAF 結晶の蛍光スペクトルが測定され、この結果によりそのピークにおける波長の 290 nm に合わせたプローブ光として、発振波長を 870 nm のモードロックチタンサファイアレーザーの 3 倍波(290 nm)が発生された。Ce:LiSCAF 結晶の励起光源は、光学特性の測定結果に基づいて繰り返し 10 Hz、パルス幅 10 ns の Q スイッチ Nd:YAG レーザーが用いられた。このときの実験配置を Fig. 2.2.3 に示す。モードロックチタンサファイアレーザーの繰り返しは、82 MHz、パルス幅は、100 fs であるので、プローブ光のパルスは、レーザー媒質による蛍光に比べて十分短く、また繰り返しも高く周期も短いため蛍光とプローブ光を 1 回の測定で分離して検出して利得を求めることができる。本実験においては、高速な光検出器であるバイプラナ光電管でプローブ光を検出し、Ce:LiSCAF 結晶の利得が 2 倍であると測定することができた (Fig. 2.2.4)。今回のレーザー媒質は、同じ Ce^{3+} イオンを添加したフッ化物結晶の Ce:LiCAF や Ce:LiSAF 結晶と特性が近似していたため、Ce:LiSCAF 結晶の特性を予想し、プローブ光源を容易に選択することができた。しかし、実際にはそのような予測が成り立たないのが実情である。また、レーザー媒質の広い利得のスペクトル形状を得るためには、各波長において上記で述べたような利得測定を行い、その結果をプロットする必要がある。この方法では、プローブ光源の波長の調整によって測定に時間がかかるばかりか、新開発の材料にはしばしば見られる励起光による媒質の劣化などの特性変化が起こり正確な

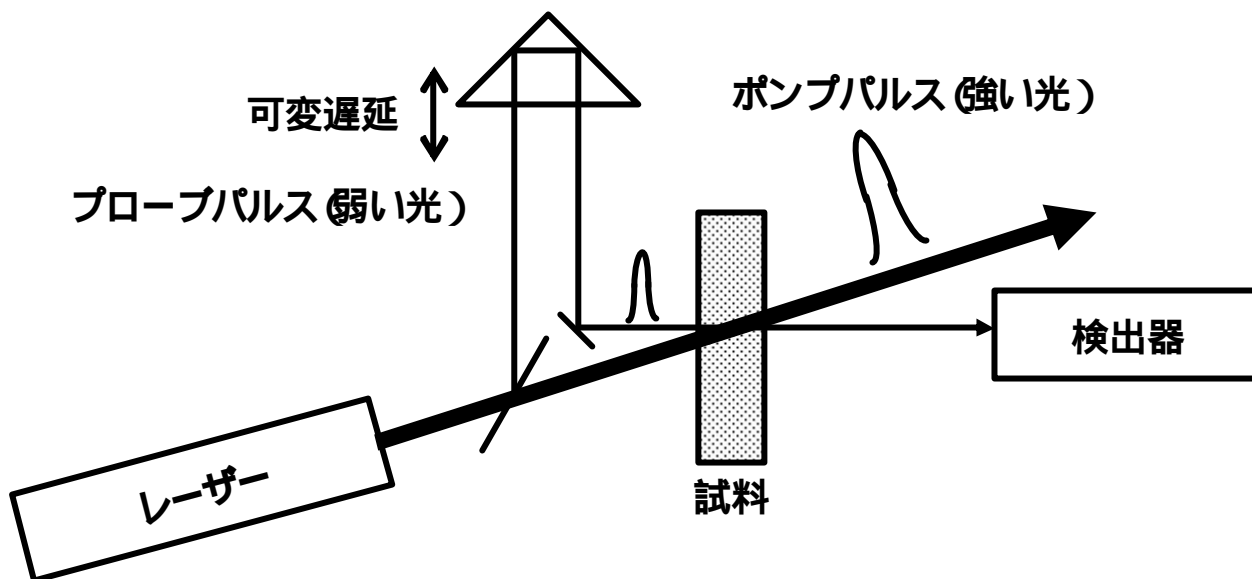


Fig. 2.2.1 最初の超短パルスを用いたポンプ・プローブ法を用いた実験は、SheltonとArmstrongによって最初に行われた。この実験では、サンプルとして過飽和吸収体の透過率時間変化がモードロック固体レーザーをプローブ光源として用いて測定された。

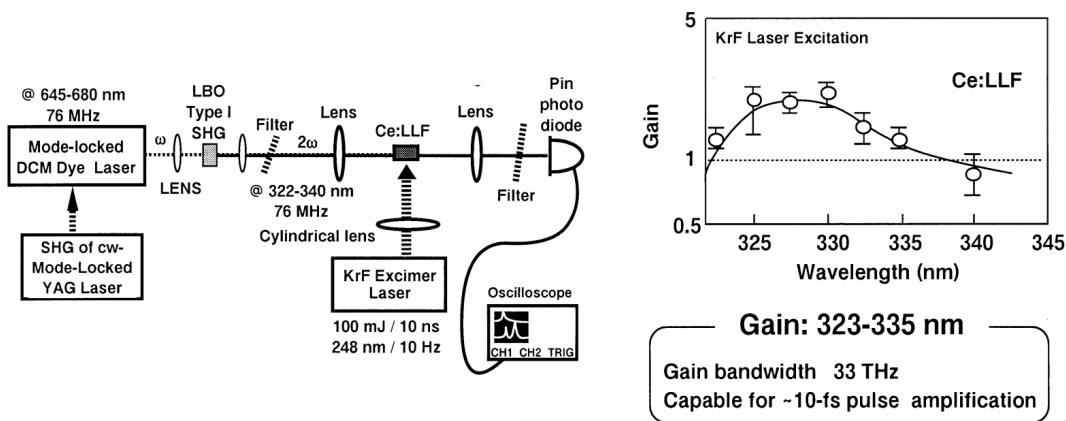


Fig. 2.2.2 色素モードロックレーザーをプローブ光源に用いた簡便なポンプ・プローブ法によって、Ce:LLF結晶の利得が測定された[2, 3]。

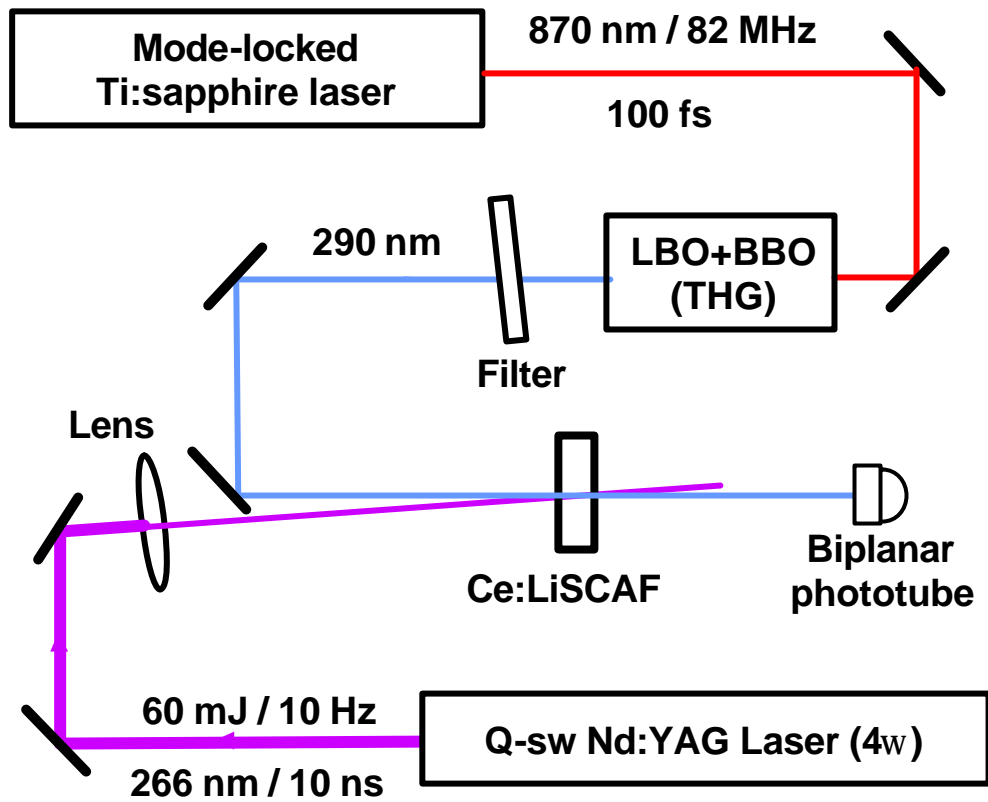


Fig. 2.2.3 ポンプ・プローブ法によるCe:LiSCAF結晶の利得測定配置図。モードロックチタンサファイアレーザーの発振波長を870 nmとし、この3倍波(290 nm)を発生させプローブ光とした。

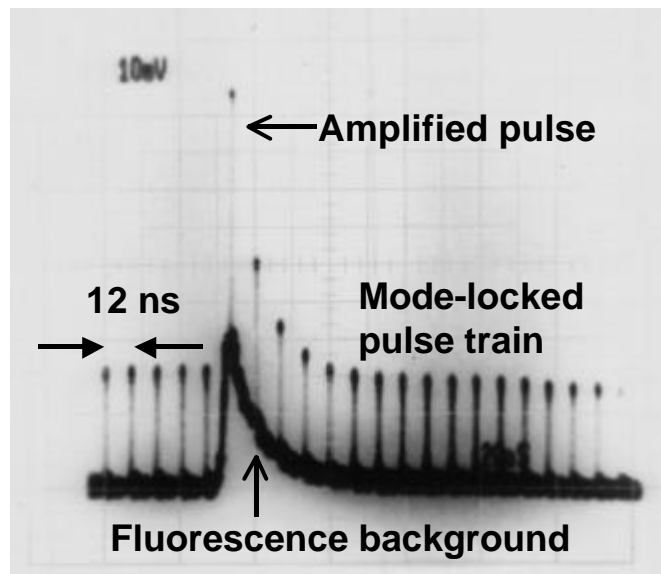


Fig. 2.2.4 モードロックレーザーを用いたポンプ・プローブ法で得られた結果。波長290 nmでCe:LiSCAF結晶の増幅率が2と測定できた。

利得評価が困難になると予想される。従って、特性が未知の新しいレーザー媒質でも利得スペクトルを簡便に短時間で調査できる方法を開発する必要がある。

2.3 新しいレーザー媒質評価法

2.3.1 2つのレーザー媒質を用いた利得評価法

より簡便で信頼性高くレーザー媒質の利得スペクトルを調査するためには、単一の波長でしか発振しないレーザー光をその都度プローブ光源として用意するのは得策ではない。そこで、測定したいレーザー媒質の蛍光スペクトルの波長では利得もあると考えられるので、被測定レーザー媒質と同一の媒質の蛍光がプローブ光となり得るのではないかと考えられた[5]。従って、考案された新しい方法では、新レーザー媒質を2個用意し、プローブ光はその1つからの蛍光を用い、もう一方を、利得を測定するためのサンプル媒質として用いるのである。

プローブ用の蛍光を発生する媒質と利得が測定されるサンプル媒質を同じ条件で同時に励起すると、当然ながら同じ特性を持つレーザー媒質なので、プローブ光の蛍光とサンプル媒質から発生する蛍光は同じ波長、強度と時間特性を持つ。その場合プローブ光が、利得に対して大きいため利得への影響が無視できなくなるため、小信号利得として利得の値が測定されなくなってしまう可能性がある。また、2つの媒質による蛍光が検出器上で重なるために、このピークの値で検出信号が飽和しないように感度を制御すると、利得が弱い領域での検出器の感度が相対的に低くなってしまい、利得分布の裾まで観測されないという事態が起こりうる。この対策として、プローブ光を何らかの方法で波長に対して一様に強度を低下させるか、2つの媒質に対する励起の時間に差を設けて、プローブ光の強度が十分に減衰した時点で増幅されるようにする工夫が必要になる。実際には、後者の方法が簡便で信頼性が高いと考えられる。

以上のような方法で、ポンプ・プローブ法を行う場合、実際に観測されるべき増幅（あるいは吸収）されたプローブ光は、幅広いスペクトルと蛍光の寿命程度の時間を持った微弱なパルス光となる。このパルス光のスペクトルと短い時間幅の2つの情報を同時に取得できる計測装置は、ストリークカメラである。ストリークカメラは、高速な光信号を空間的な情報へと変換できる装置である。現在主に用いられている電子光学方式のストリークカメラの原理は、次のように説明される。ストリークカメラの光電面に入射した光によって発生した電子を高速掃引電圧によって偏向された後に蛍光スクリーン上で再び光学像に変換される。入射した光の時間によって、蛍光スクリーン上で空間的な画像となるのでこれをCCDカメラなどで画像を電気信号として取り出すことができる。現在、ストリークカメラではサブピコ秒レベルの時間分解能を持つものまで存在する。入射光を分光器を通して分光した光をストリークカメラに入射することで、波長と時間方向の2次元の画像として分解された入射光強度の分布が測定できる。従来のポンプ・プローブ法の多くの場合は、パルスレーザーをプローブ光として用いた場合に比べると、利得の波長と時間に関する情報が一回の測定による画像として得られるので、この新しい方法は、前述のプローブ光源の用意に関する問題を解決する事だけでなく、利得の包括的な情報を短時間で簡

易かつ正確に得られるという大きな利点も持っている。この方法のために必要となる実験配置を Fig. 2.3.1 に示す。この図の詳しい説明は 2.3.3 で述べられる。

実際には、増幅あるいは吸収されたプローブ光は、サンプル媒質そのものからも発生する蛍光と同じ波長、時間領域にあるためにそれらは重なって観測されてしまう。そのため、サンプル媒質そのものから発生する蛍光を差し引くために、サンプル媒質のみを励起した場合の蛍光強度の分布が必要になる。また、利得の大きさを求めるために増幅（あるいは吸収）される前のプローブ光の強度分布も必要になる。従って、1つのレーザー媒質の利得分布画像を得るためには、プローブ光源のための媒質を励起した場合、サンプル媒質のみを励起した場合とそれらを励起した場合での3つの画像を取得し、それぞれの画像で演算をする必要がある。

2.3.2 新レーザー媒質評価法の数値シミュレーション

ここでは、実際の測定実験に先立って数値計算を行い、レーザー媒質を2個用いた新しいレーザー媒質の時間分解利得測定法の数値シミュレーションを行い、この方法が正しいことを証明する。

ここで、サンプル媒質の利得スペクトル形状は、不均一な広がりであるとしてガウス型であると仮定する。利得媒質に入射した周波数 ν 、時間 t において強度 $I_{in}(\nu, t)$ の光は、増幅されて強度 $I_{out}(\nu, t)$ になる。

$$I_{out}(\nu, t) = G(\nu, t) \cdot I_{in}(\nu, t) \quad (2.3.1)$$

ここで、 $G(\nu, t)$ は増幅率である。増幅率 $G(\nu, t)$ は、利得媒質の長さを l とすると、次の式によって表される。

$$G(\nu, t) = \exp[g(\nu, t) \cdot l] \quad (2.3.2)$$

ここで、 $g(\nu, t)$ は媒質の利得係数である。サンプル媒質の利得スペクトル形状はガウス型であるので、増幅率 $G(\nu, t)$ は、次の式で表される。

$$G(\nu, t) = \exp\left\{ \exp\left[-a_0(\nu - \nu_0)^2 \right] - \frac{t - t_0}{\tau_0} \right\} \cdot l \quad (2.3.3)$$

この式で、 ν_0 は利得の中心周波数、 t_0 は励起された時間、 τ_0 はサンプル媒質の蛍光寿命であるとする。励起光のパルス幅は、サンプル媒質の蛍光寿命に対して十分に小さいと仮定する。ここで、プローブ光を発生するレーザー媒質の蛍光スペクトル形状が、サンプル媒質と同じガウス型であるとする、増幅された光の強度は次の式で表される。

$$I_{out}(\nu, t) = \exp\left\{ \exp\left[-a_0(\nu - \nu_0)^2 \right] - \frac{t - t_0}{\tau_0} \right\} \cdot \exp\left[-a_1(\nu - \nu_1)^2 - \frac{t - t_1}{\tau_1} \right] \quad (2.3.4)$$

ν_1 はプローブ光スペクトルの中心周波数、 t_1 は増幅媒質に入射した時間、 τ_1 はプローブ光を発生するレーザー媒質の蛍光寿命であるとする。プローブ光を発生するレーザー媒質がサンプル媒質と同じ種類のものであるならば、 $\nu_0 = \nu_1$ 、 $a_0 = a_1$ と $\tau_0 = \tau_1$ の式が成り立つ。さらに、ここで、簡単のために、 $l = a_0 = \tau_0 = 1$ 、 $t_0 = 0$ とすると、増幅された光の強度 $I_{out}(\nu, t)$ は、次の式となる。

$$I_{out}(\nu, t) = \exp\left\{ \exp\left[-(\nu - \nu_0)^2 \right] - (\nu - \nu_0)^2 - 2t + t_1 \right\} \quad (2.3.5)$$

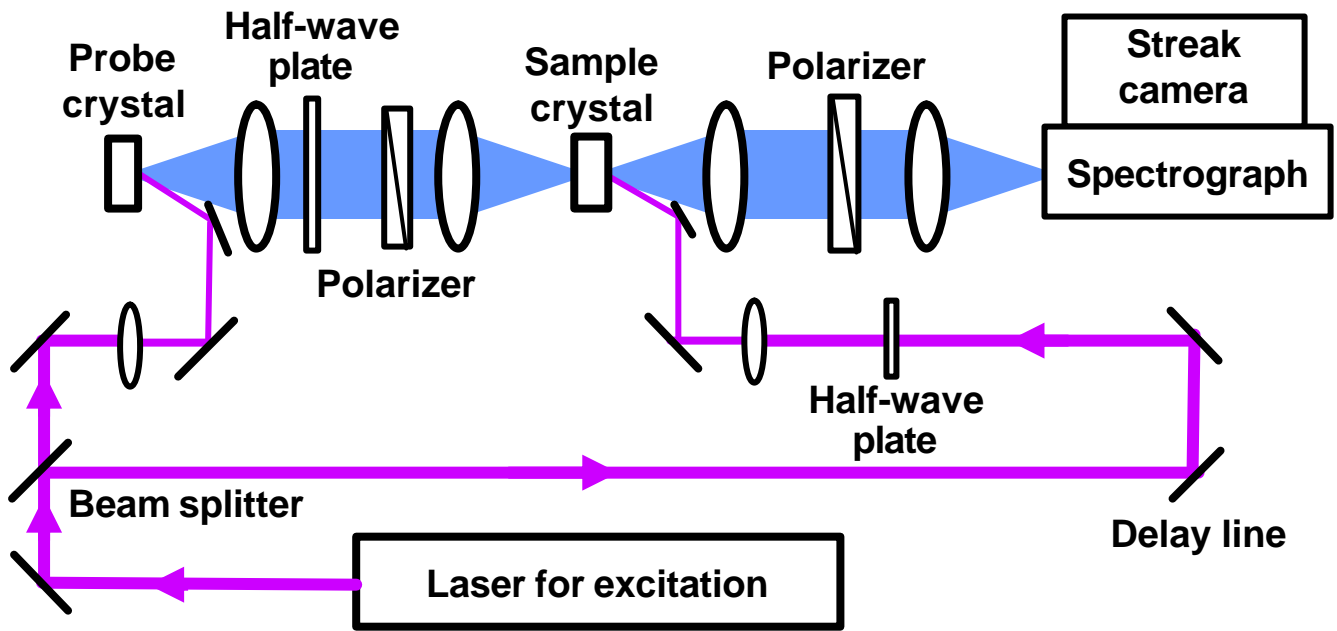


Fig. 2.3.1 2つの媒質を用いるポンプ・プローブ法の実験配置図とその写真。プローブ光はその1つからの蛍光を用いる。

以上の計算を、実際の数値で計算しグラフに表示したのが Fig. 2.3.2- Fig. 2.3.9 である。この計算では、寿命を 1、 $\tau_0 = t_0 = 0$ として計算した。プローブ光が発生した時間に対する増幅媒質を励起する遅延時間として蛍光寿命の半分、 $t_1 = 0.5$ とした。まず、Fig. 2.3.2 (a)と Fig. 2.3.2 (b) はそれぞれ、プローブ光強度 $I_{in}(\lambda, t)$ とサンプル媒質から発生する蛍光強度 $I_s(\lambda, t)$ を縦軸に、時間 (0~4) と波長 (相対周波数、-3~3) の 3 次元の軸としてある。励起光源は、媒質の蛍光寿命に対して十分パルス幅が短いとし、パルスの持続時間による励起の影響は無視されている。サンプル媒質が持つ増幅率の時間と波長方向への分布は、反転分布密度に比例するので蛍光強度の分布から式 2.3.3、Fig. 2.3.3 のグラフの様に求められる。サンプル媒質による吸収は一切考慮されていないため、周波数、時間領域で中心から離れるに従って増幅率の値が 1 に近づくことがこのグラフより判る。式 2.3.1 から示されるように、サンプル媒質を透過したプローブ光の強度は、増幅率との積で表されるので、増幅後のプローブ光強度は、Fig. 2.3.4 のようなプローブ光と利得が波長と時間領域で重なる部分で強度が著しく高くなっていることが判る。さらに実際にプローブ光を観測する場合は、媒質を伝播したプローブ光のほかに、サンプル媒質において誘導放出による増幅に寄与せずに自然放出によって発生した蛍光の一部がプローブ光と同軸に発生し、増幅されたプローブ光と時間的、空間的に重なって観測されると予想される。このために、Fig. 2.3.4 に Fig. 2.3.2 (b) を足し合わせた Fig. 2.3.5 のような強度分布の光として観測されると予想される。以上の計算で中心波長における、光の強度の時間変化をプロットしたものが Fig. 2.3.6 である。最終的に得られた増幅(あるいは吸収)されたプローブ光からサンプル媒質の利得特性を得るためには、観測される光の強度分布からサンプル媒質からの蛍光分 $I_s(\lambda, t)$ を差し引き、元のプローブ光で除算することで得られる。利得も吸収も無い場合、増幅率の値は 1 になる。実際に観測されるプローブ光の強度を $I_{out+s}(\lambda, t) (=I_{out}(\lambda, t) + I_s(\lambda, t))$ とすると、サンプル媒質の利得分布を求める式は次のように表される。

$$G(\lambda, t) = \frac{I_{out+s}(\lambda, t) - I_s(\lambda, t)}{I_{in}(\lambda, t)} \quad (2.3.6)$$

光の増幅が行われる際に注意すべき点は、利得が大きいと増幅されたプローブ光のスペクトルが相対的に狭くなったり、蛍光寿命が短くなったりする現象である。これは、光増幅の作用が増幅係数の指数で作用するために、利得の波長依存性が顕著に表れる為である。Fig. 2.3.7 で示したグラフは、 I_0 はスペクトル形状がガウシアン型の入射光が増幅後に、半値全幅が小さくなる様子を示したものである。 I_1 は、ある利得媒質を伝播し、増幅後のスペクトル形状を示している。これを見ると全ての波長領域で強度は増幅前に比べて大きくなっているが、中心波長が最も大きな増幅率で増幅され、周辺部ほど小さい増幅率で増幅されるので、中心波長とそれから離れた波長に対する強度の差が強調されることが理解できる。さらに、この利得媒質の持つ増幅係数の 2 倍 (あるいは利得媒質の長さが 2 倍) の利得媒質中を I_0 が伝播し増幅された場合での光強度スペクトルを I_2 として示している。これらのスペクトルから、示されることは利得媒質の増幅率が大きいほどこのスペクトル幅の狭まる作用も顕著になることを意味している。この作用は、波長の次元だけでなく時間の次元でも同様に作用する

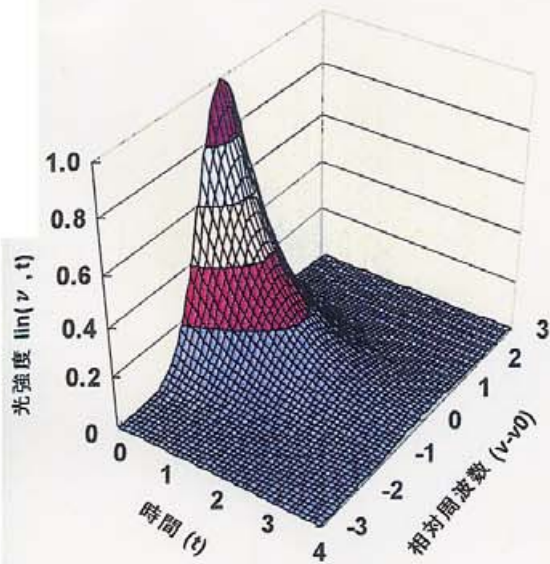


Fig. 2.3.2(a) プローブ光となる蛍光強度の周波数、時間分布。

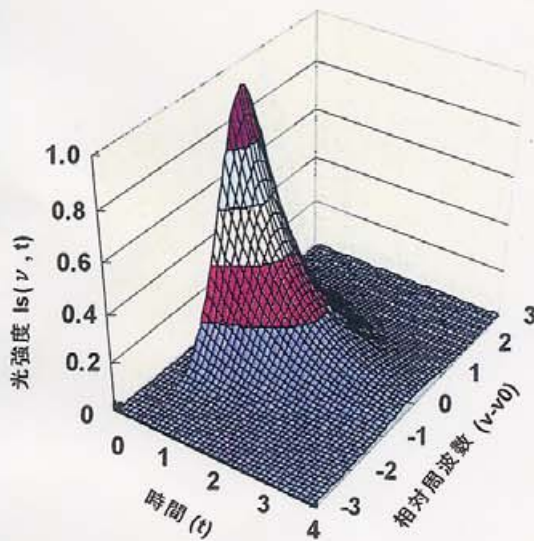


Fig. 2.3.2(b) サンプル媒質から発生する蛍光の強度の周波数、時間分布。プローブ光に対して蛍光寿命の半分、0.5だけ遅れている。

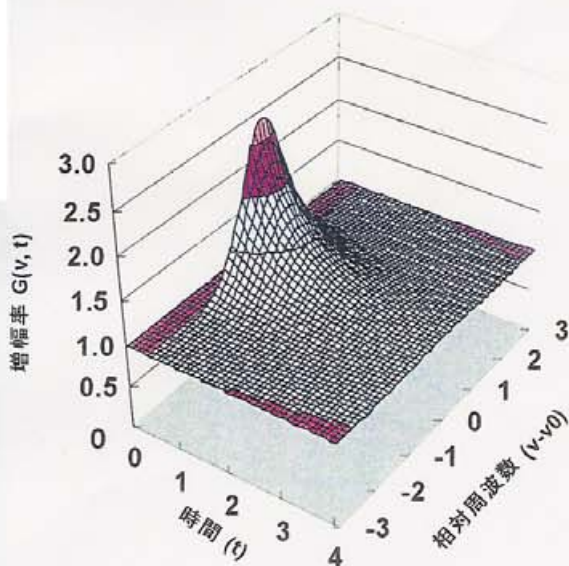


Fig. 2.3.3 増幅率の時間と波長方向への分布

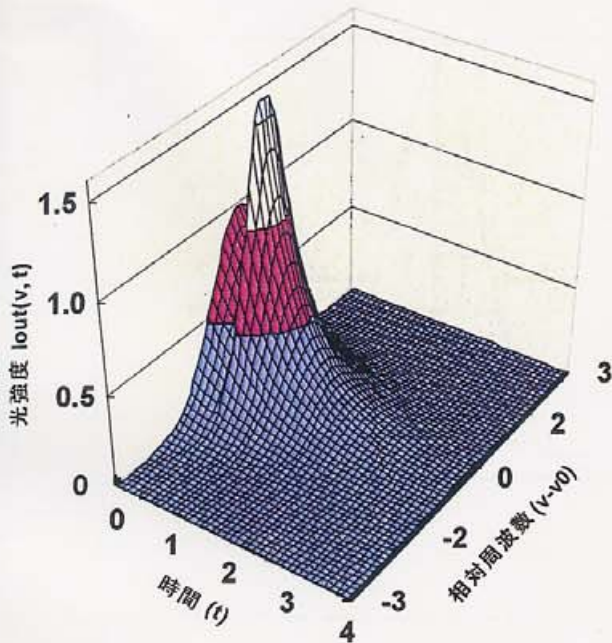


Fig. 2.3.4 サンプル媒質を伝播したプローブ光の強度分布。プローブ光と利得が波長と時間領域で重なる部分で強度が著しく高くなっている。

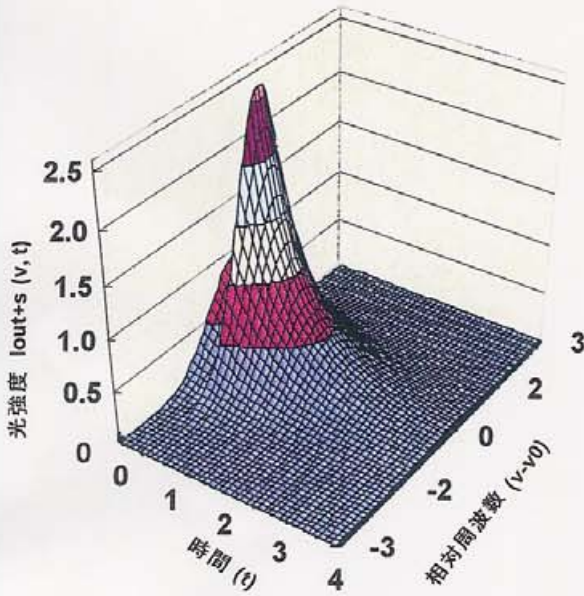


Fig. 2.3.5 最終的にプローブ光のほかに、サンプル媒質において発生した蛍光の一部がプローブ光と時間的、空間的に重なって観測される。

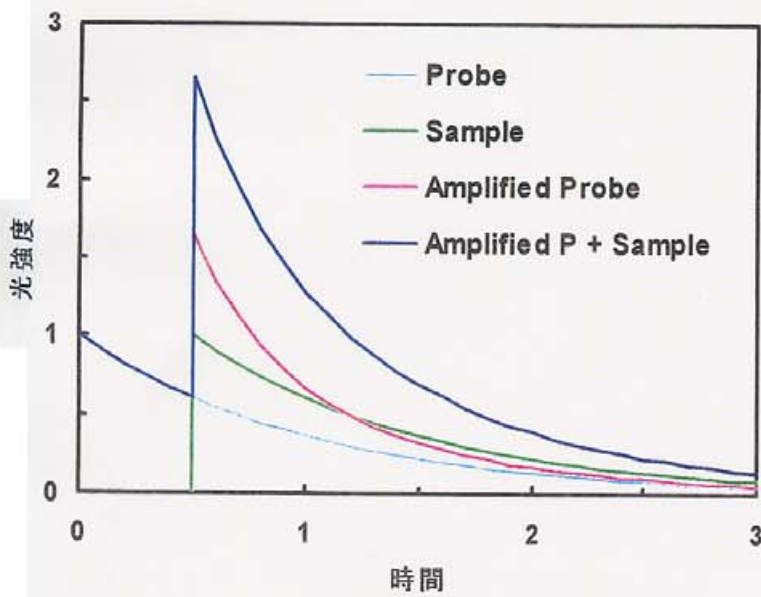


Fig. 2.3.6 蛍光の中心波長における、光の強度の時間変化。

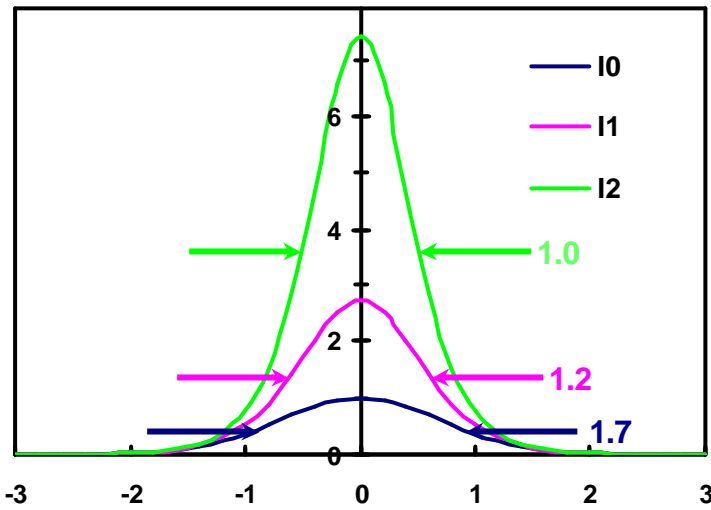


Fig. 2.3.7 I_0 はスペクトル形状がガウシアン型の入射光が増幅後に、半値全幅が小さくなる様子を示したものの

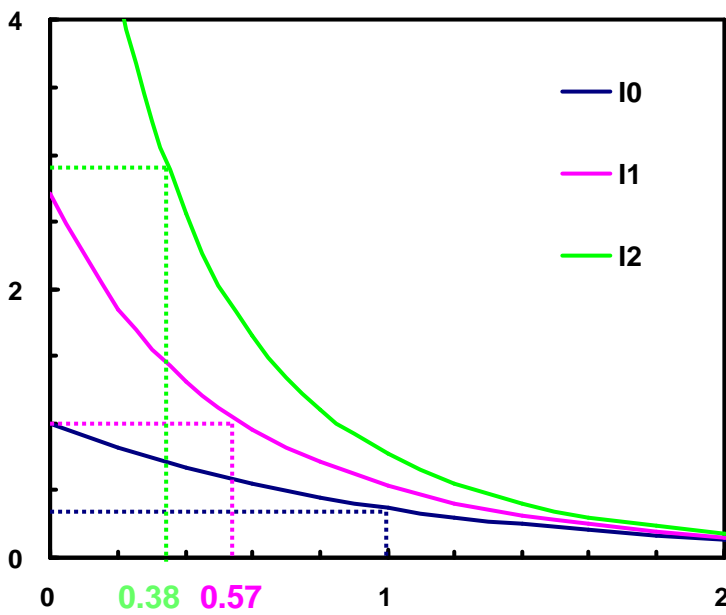


Fig. 2.3.8 増幅率が大きいほど利得の寿命が相対的に短くなってしまいうことがわかる。

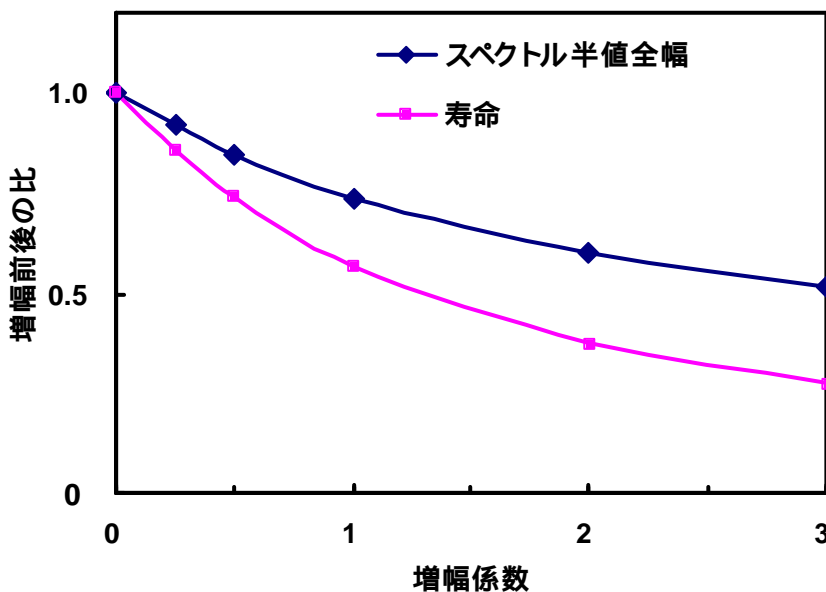


Fig. 2.3.9 横軸に増幅係数と縦軸にガウシアン型の入射光に対する増幅光スペクトルの半値全幅の比、および蛍光寿命の比をプロットしたものである。これからも、増幅係数が大きくなると、急速にスペクトルの幅や蛍光寿命が相対的に小さくなってしまいうことが理解できる。

ために増幅率が大きいほど利得の寿命が相対的に短くなってしまふことになる。この作用を波長で示したグラフと同様に時間と強度でプロットしたグラフを Fig. 2.3.8 に示す。これからも増幅率が大きいほど利得の寿命が相対的に短くなってしまふことがわかる。Fig. 2.3.9 に示したグラフは、横軸に相対的な増幅係数（あるいは相対的な利得媒質の長さ）と縦軸にガウシアン型の入射光に対する増幅光スペクトルの半値全幅の比、および蛍光寿命の比をプロットしたものである。これからも、増幅係数が大きくなると、急速にスペクトルの幅や蛍光寿命が相対的に小さくなってしまふことが理解できる。

この計算結果から言えることは、実際にポンプ・プローブ法でサンプルの増幅率が大きい場合、検出器の感度をプローブ光の最大強度に合わせると強度の低い部分の信号レベルが相対的に低下し、検出感度を下回ってしまうため利得分布全体を観測できないということが起こる可能性があるという事である。この問題の対策としては、増幅媒質に対する励起強度などを制御することで、故意に増幅率を制限するか、あるいは広いダイナミックレンジの検出器を用いたり、利得の中心波長から離れた部分では検出器の感度を上げたりする検出器側の工夫が必要となる。

2.3.3 新ポンプ・プローブ法の実験配置

この 2 つの新しい媒質を用いるポンプ・プローブ法のための実験配置の写真が、Fig. 2.3.10 に示されている。この場合のレーザー媒質は、Ce:LiCAF 結晶が用いられたため、励起源として Nd:YAG レーザーの 4 倍波が用いられている[6]。2 つの結晶の間にあるレンズ対は、プローブ光源用の媒質（プローブ媒質）からの蛍光を集光し平行光にした後、サンプル用のもう一方の媒質（サンプル媒質）に焦点を結ぶためである。サンプル媒質が、利得をもてばプローブ光はサンプル媒質の誘導放出により増幅され再びレンズ対により検出器に集光される。もし、サンプル媒質が逆にプローブ光の波長において吸収する性質をもつならば、プローブ光は減衰するであろう。励起光源からの光線はビームスプリッターで 2 つに分けられている。その 1 つの光線は、プローブ結晶を励起するために、もう一方の光線は前者に対して適当な遅延をもってサンプルの結晶を励起するために誘導されている。ここでの遅延は、プローブ用の蛍光とサンプルからの蛍光の間で適当な分離を生じさせるために設けられている。この適当な遅延の大きさは、前にも述べたがプローブ光源である蛍光が十分に減衰して強度が低くなりプローブ光として扱うことの出来る状態になったときにサンプル媒質が励起されるタイミングになるような遅延量を意味している。時間の遅延量が小さすぎると、プローブ光の強度が高すぎるために、小信号利得としてサンプル媒質の利得を測定することが不可能になる可能性があり、また逆に時間の遅延量が大きすぎると、プローブ光が弱すぎて増幅が観測できなくなる可能性がある。本実験では、蛍光寿命が約 20 ns の Ce:LiCAF 結晶であるため、遅延の大きさは 10 ns 程度に設定された。これは 3 m の光路長に相当する。本実験において励起光は高効率で励起するために媒質上で光軸とほとんど同軸に入射された。異なる偏光の条件での利得特性を評価するために、半波長板と偏光板が各レンズ対の間に、半波長板がサンプル媒質の励起光に挿入されている。2 つのレーザ

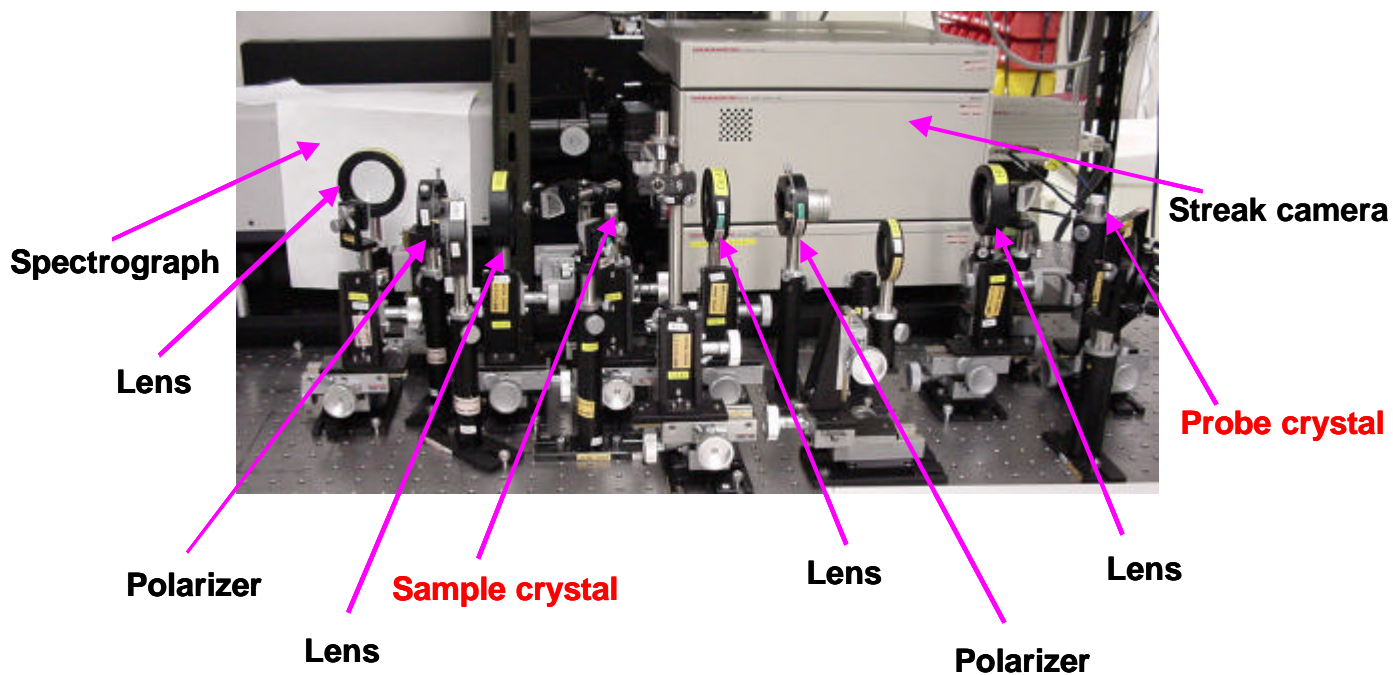


Fig. 2.3.10 2つの媒質を用いるポンプ・プローブ法の実験配置図の写真。プローブ光は、最終的に分光器と組み合わせたストリークカメラによって、波長と時間の2次元での強度分布の画像として取得される。

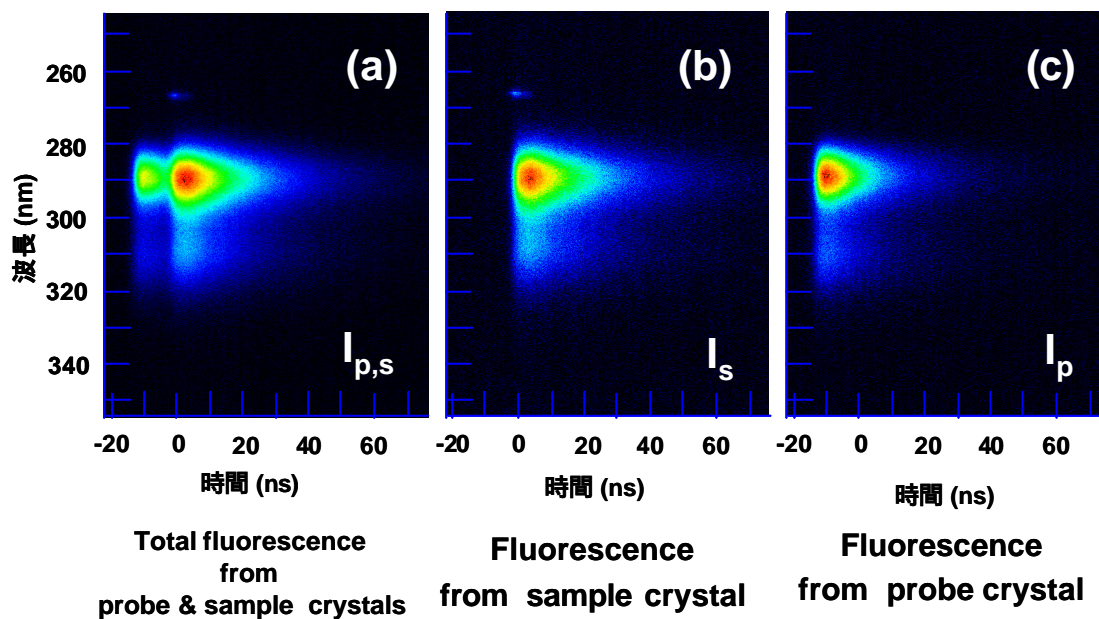


Fig. 2.3.11 ストリークカメラで撮られた3つの画像。(a)は、両方の結晶を同時に励起した場合、(b)はサンプル結晶だけを励起した場合、(c)はプローブ光のための結晶だけを励起した場合に撮られた画像である。

一媒質の間にある半波長板と偏光板およびサンプル媒質と分光器の間にある偏光板は、プローブ光の偏光方向を制御するために設けられている。波長板を回転させることで、プローブ光の偏光方向を回転させ、同時に 2 つの偏光板をプローブ光の偏光方向に平行に合わせることで、サンプル媒質の利得における偏光依存特性が求められるのである。波長板は、プローブ光の波長に合わせるものを用意する必要があるため、実際には以上の偏光用の光学素子が無い状態で、利得のピークを見極めてから波長板を選択し、挿入することになる。また、サンプル媒質の励起光に挿入された半波長板は、励起光の偏光方向を変化させることで励起光の偏光による媒質の利得特性の変化を観測するためのものである。

最終的に増幅された蛍光は、分光器と組み合わせたストリークカメラによって、波長と時間の 2 次元をもつ強度分布の画像として取得される。本実験では、150 line/mm の回折格子を持つ焦点距離 250 mm の分光器と組み合わせたストリークカメラ (浜松ホトニクス C5680、低速掃引ユニット M5677) が用いられた。取り込む画像の掃引時間と波長領域は、サンプルのレーザー媒質の利得分布を十分に含むように設定されなければならない。本実験においては Ce:LiCAF 結晶の蛍光画像全体を含むように、掃引時間 100 ns、波長領域 240-350 nm の撮影条件で画像が取得された。

以上の手順で取得された画像は、2.3.2 で説明されたように、利得情報であるプローブ光強度を含むが、サンプルのレーザー媒質からの蛍光も同時に含むために、この不必要な蛍光の分を差し引く必要がある。そのためには、それぞれのレーザー媒質の一方のみを励起した状態の 2 つの蛍光画像を取得し、利得情報を含む画像の差をとることで実現できる。以上をまとめると、1 つの利得分布を示す画像を得るためにストリークカメラで 3 つの画像を取得する必要があり、これらの画像同士の演算により 1 つの利得スペクトルの画像となる。本実験で、レーザー媒質として Ce:LiCAF 結晶を用いた場合での以上で述べた 3 つの画像を、プローブ光を発生する結晶だけを励起した場合 Fig. 2.3.11(a)、サンプル結晶だけを励起した場合 Fig. 2.3.11 (b)、両方の結晶を同時に励起した場合 Fig. 2.3.11 (c) として示す。Fig. 2.3.11 (a), (b) の画像において波長 266 nm 付近に見られる光は励起光の漏れ光である。媒質の利得分布を示す画像を得るために必要な画像の演算は、式 2.3.6 と同様に次の式になる。

$$I_G = \frac{I_{p,s} - I_p - I_s}{I_p} \quad (2.3.7)$$

ここで、 I_G は利得の分布を示す画像を意味する。 I_p はプローブ光を発生する媒質のみを励起した場合、 I_s はサンプル媒質のみを励起した場合、 $I_{p,s}$ は両方の媒質を同時に励起した場合で取得された画像をそれぞれ意味している。差分の画像 ($I_{p,s} - I_p - I_s$) は、サンプルの結晶によって増幅や吸収の変調を受けた蛍光の強度を意味する。ここで元のプローブ光の画像 I_p で除算すること得られる利得画像 I_G は、0 よりも大きい値がサンプル媒質によって増幅、0 よりも小さい値は吸収を意味する画像が得られる。実際の Ce:LiCAF 結晶を用いた場合での画像で示すと次のようになる。Fig. 2.3.12 は、両方の媒質を同時に励起した場合の画像 Fig. 2.3.11 (a) から、プローブ光を発生する結晶とサンプル結晶だけをそれぞれ励起した場

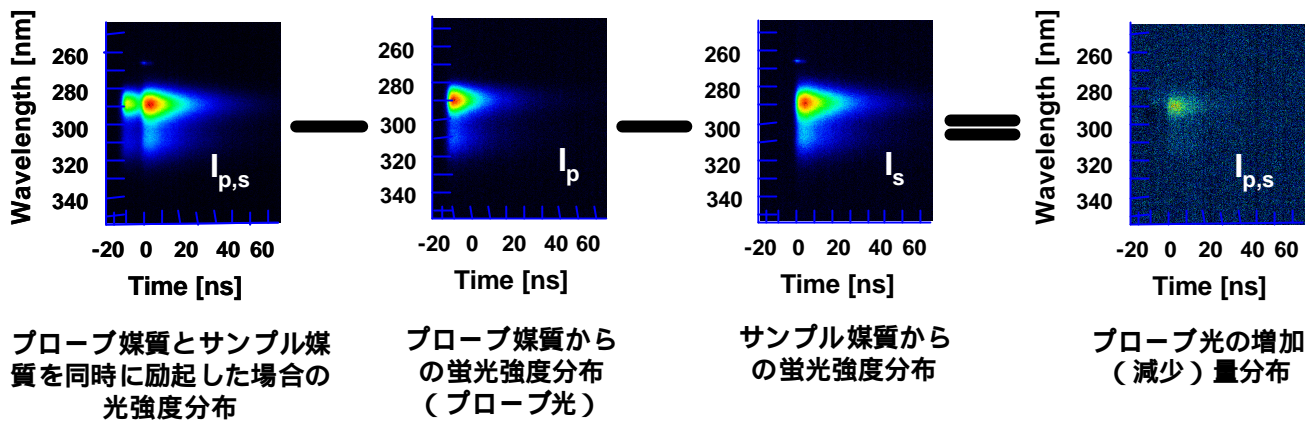


Fig. 2.3.12 画像の演算過程。両方の結晶を同時に励起した場合の画像から、プロープ結晶とサンプル結晶だけをそれぞれ励起した場合の画像を差し引くことで得られる。

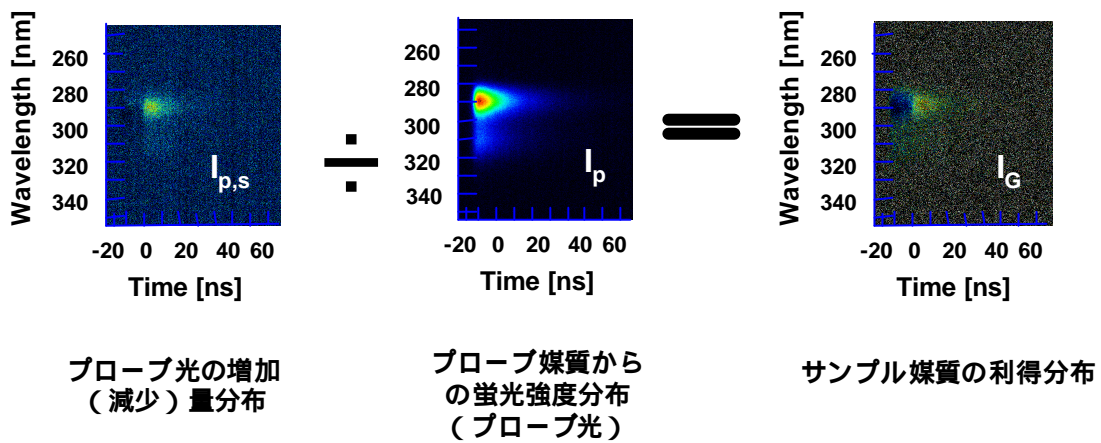
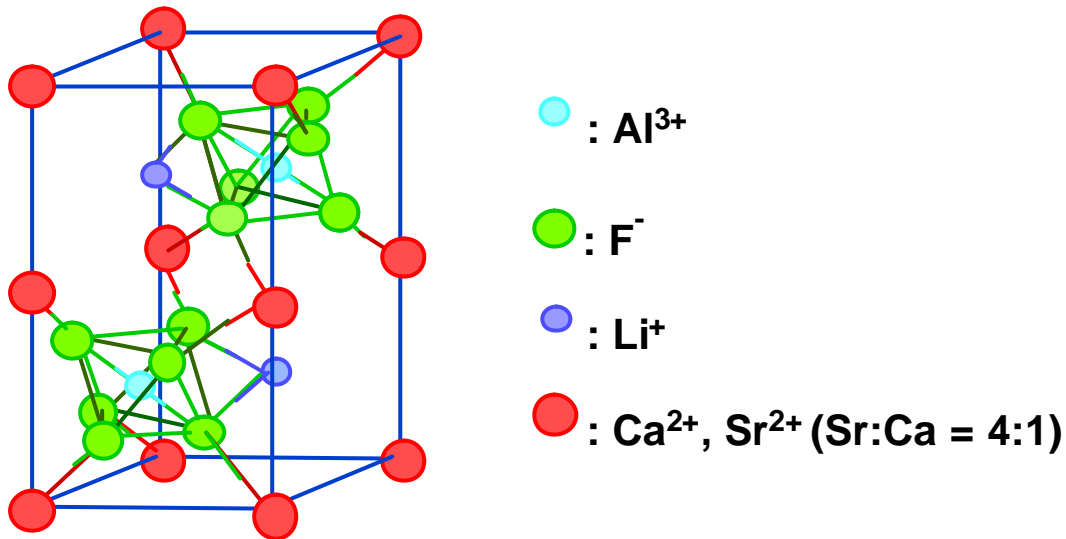
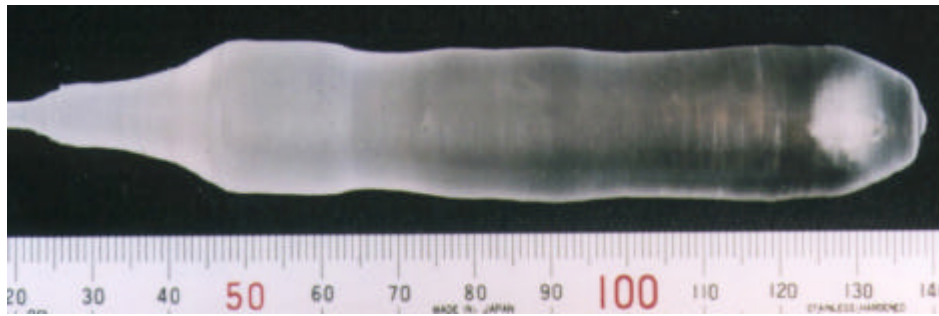


Fig. 2.3.13 画像の演算過程。サンプル結晶の利得分布画像は、差分の画像をプロープ結晶の蛍光強度画像で除算して得られる。

合に撮られた画像 Fig. 2.3.11 (b), (c) を差し引いたもので、画像は、0 以上の値でしか可視化されていないので、吸収の様子は検出できていない。これを Fig. 2.3.13 で示されるように、プローブ光 Fig. 2.3.11(c) の画像で除算した画像が利得画像 I_G として得られることになる。ここでの利得は、増幅も吸収も無い場合で 0 となる点に留意する必要がある。増幅率は、この方法で得られた利得に 1 を加算する必要がある。ここで、利得の分布画像において注意する点として以下の点がある。1 つは、利得も吸収も無い波長、時間の領域では必ずしも全ての画素で利得の値が 0 にならないことがあるという点である。これは、プローブ光のみの画像で除算する際に、この画像でプローブ光の写っていない領域では、ノイズ成分を含むバックグラウンドの値となるために、この領域では得られる利得画像では大きなノイズとして表示されてしまうのである。そして、プローブ光とサンプル媒質による蛍光でスペクトルと時間的に重ならなかった領域では、プローブ光同士の除算となるために、この領域ではほぼ均一に 0 の値の領域となる。実際に、Fig. 2.3.13 で利得の観測された領域より時間的に早い領域（利得領域の左側）では、ノイズの少ない領域が見られる。

2.3.4 フッ化物紫外レーザー媒質の利得測定

ここでは、上記の新しいレーザー媒質利得評価法の開発の目的でもある、フッ化物紫外レーザー媒質の利得分布を実際に測定し、これを元に紫外超短パルスのための増幅媒質を決定する。本実験で採用された紫外レーザー媒質波長可変レーザー媒質は、これまでレーザー発振が確認されている Ce:LiCAF、Ce:LiSAF 結晶に加えて、レーザー光源を用いた従来の利得測定しか行われていない Ce:LiSCAF 結晶に対してもその利得が評価された。Ce:LiSCAF 結晶については、ここで簡単に説明する。Ce³⁺:LiSr_{0.8}Ca_{0.2}AlF₆ (Ce:LiSCAF) 結晶は、Ce:LiCAF の欠点の 1 つ、蛍光寿命が短いという不利な点を克服するために、新しい母結晶が探索された結果、考案されたレーザー媒質の 1 つである[4]。本研究で用いられた Ce:LiSCAF 結晶は、Ce:LiCAF 結晶の育成と同様に、Czochralski 法により 20 mm の直径で育成された[7]。Fig. 2.3.14 にその写真と結晶構造を示す。Ce:LiSCAF 結晶の無偏光の吸収スペクトルが、Ce:LiCAF 結晶と Ce:LiSAF 結晶と共に分光器によって Fig. 2.3.15 に示すように測定された。その結果、Ce:LiSCAF と Ce:LiSAF は 268 nm に、Ce:LiCAF は 270 nm に吸収のピークを持つことがわかった。これらの Ce イオン添加フッ化物結晶が、Nd:YAG レーザーの 4 倍波による波長 266 nm でパルス幅 10 ns のパルス光によって励起され、蛍光スペクトル Fig. 2.3.16 と蛍光寿命が分光器を取りつけたストリークカメラによって測定された。その結果 Ce:LiSCAF 結晶は、Ce:LiCAF や Ce:LiSAF 結晶に匹敵する広帯域な蛍光スペクトルを持つことを示した。それぞれの媒質の蛍光の時間軸方向についてプロファイルをプロットしたのが Fig. 2.3.17 である。このグラフより、得られたそれぞれの媒質の蛍光寿命を Table 2.3.1 に示す。Ce:LiSCAF 結晶の蛍光寿命は、25 ns であることが解明された。Ce:LiSAF と Ce:LiCAF では 20 ns であることが確認された。これらの値は以前に報告された値と近いものであった[8]。Ce:LiSCAF 結晶が持つより長い蛍光寿命は、増幅媒質の特徴として有効である。Ce:LiSCAF 結晶の吸収スペクトルのピーク波長は、Ce:LiCAF 結晶のピー



Structure illustration of Colquiriite-type fluoride single crystal, $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSr}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{AlF}_6$

Fig. 2.3.14 Ce:LiSCAF結晶の写真と結晶構造。東北大学金属材料研究所にてCzochralski法により20 mmの直径で育成された。

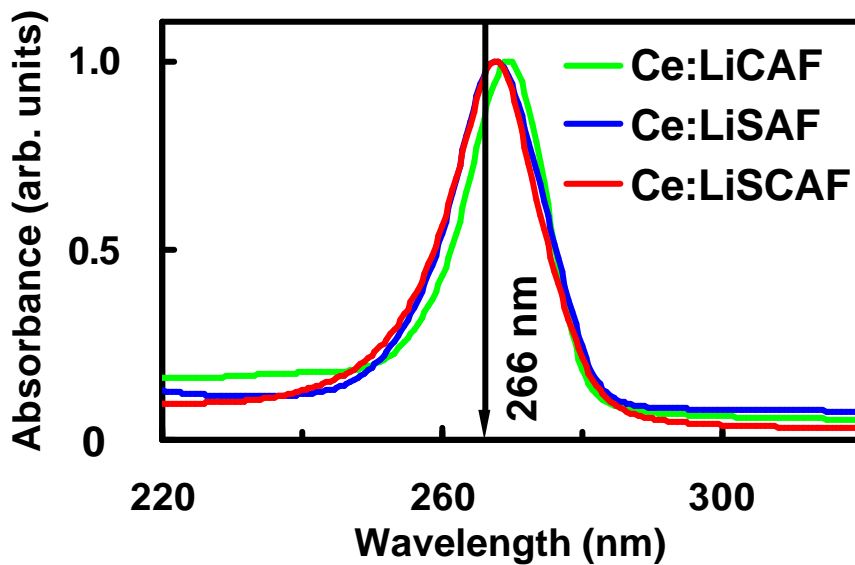
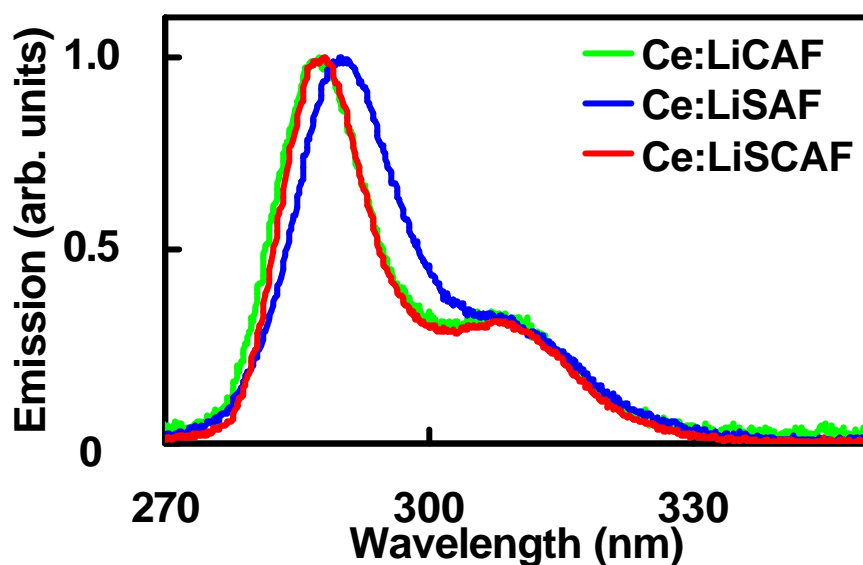


Fig. 2.3.15 フッ化物結晶の吸収スペクトル。Nd:YAGレーザーの4倍波による波長266 nmで励起が可能であることがわかる。



蛍光スペクトル

Fig. 2.3.16 フッ化物結晶の蛍光スペクトル。Ce:LiSCAFは他のフッ化物結晶と同様に広帯域な蛍光スペクトルを持つことがわかった。

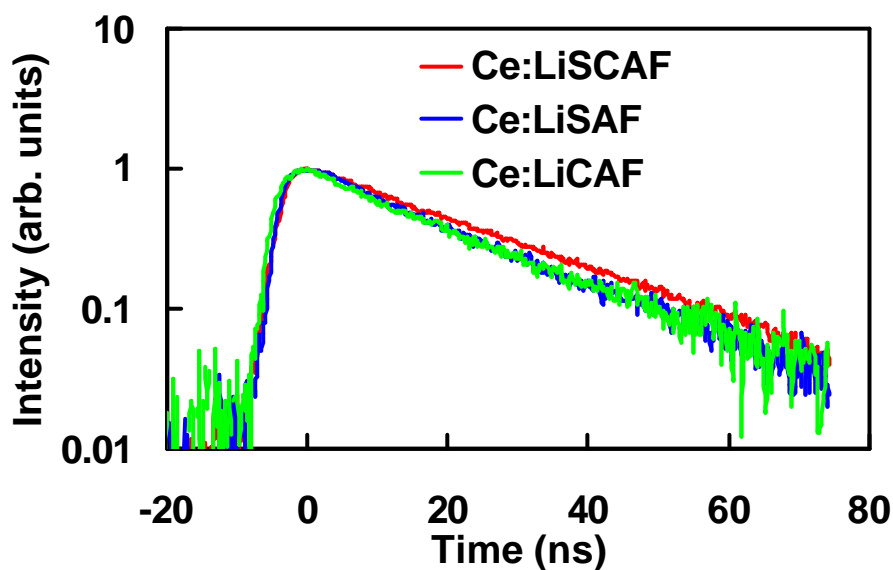


Fig. 2.3.17 フッ化物結晶での蛍光強度の時間軸プロファイル

Table 2.3.1 フッ化物結晶の蛍光寿命。Ce:LiSCAF結晶が持つ長い蛍光寿命は、増幅媒質として有効である。

結晶	Ce:LiSCAF	Ce:LiSAF	Ce:LiCAF
蛍光寿命 (ns)	25	20	20

ク波長よりも短く 266 nm により近く、蛍光スペクトルのピーク波長は Ce:LiCAF 結晶のピーク波長に極めて近い。したがって、Ce:LiSCAF 結晶は、Ce:LiSAF 結晶と比べて Ce:LiCAF 発振器のための増幅媒質として用いられた場合に、より効果的であると思われる。そこで、今までにレーザー発振が確認されている Ce:LiCAF、Ce:LiSAF 結晶に加えて、この Ce:LiSCAF 結晶に対してもその利得を評価する意義があると考えられる。これらの 3 つのレーザー媒質は、励起光源の波長が同じ Nd:YAG レーザーの 4 倍波の 266 nm であることが既知であるので、励起光が約 160 mJ/cm^2 のフルエンスと遅延量 10 ns という同じ条件下で利得の評価が行われた。

以上の測定の結果、得られた Ce:LiCAF 結晶の利得分布画像は、Fig. 2.3.18 に示される。この画像は Ce:LiCAF 結晶を 偏光（結晶の光学軸に対して平行に偏光）で励起して 偏光のプロープ光とした場合に求められたもので、波長 280 から 300 nm までの波長領域で明瞭な利得が示された。この波長 290 nm での 20 nm の利得バンド幅 (FWHM) は、少なくとも 5 fs のパルス幅に相当する。同様に Ce:LiSAF 結晶の利得分布画像も、Fig. 2.3.19 に示されている。この画像から Ce:LiSAF 結晶が Ce:LiCAF 結晶に匹敵する利得帯域を持っていることが明確に読み取ることができる。しかし、Ce:LiSAF 結晶は Ce:LiCAF 結晶ほど大きな単結晶が育成可能にはなっていない点や紫外光に対する劣化の点などから、今回のポンプ・プローブ法では大きな利得と利得の広帯域特性が観測されたが、紫外レーザー増幅器の増幅媒質として用いるのは時期尚早であると判断した。Ce:LiSCAF 結晶の利得測定では、Ce:LiSCAF 結晶と Ce:LiCAF 結晶は、同様な蛍光スペクトルを持っているので、本実験では Ce:LiSCAF 結晶の利得測定において Ce:LiCAF 結晶がプローブ蛍光を得るために用いられた。Ce:LiSCAF 結晶を偏光で励起して 偏光のプロープ光とした場合に、他の偏光の条件の場合よりも大きな利得が得られた (Fig. 2.3.20)。プローブ光強度を 1 としたときに波長 289 nm 付近で最高の利得の大きさ 0.5 (増幅係数 1.5) となり、波長 280 から 300 nm までの波長領域で明瞭な利得が Ce:LiCAF 結晶と同様に示された。2.2 章で示されたモードロックレーザーをプローブ光源として、ポンプ・プローブ測定の結果は、増幅係数が 2 であり、この結果とほぼ一致する。

これらの異なる偏光の条件下で測定された利得の最大値 (Table 2.3.2) から、Ce:LiSCAF 結晶だけでなく、Ce:LiCAF と Ce:LiSAF の場合でも 偏光で励起して 偏光のプロープ光とした場合がより高い利得が得られることがわかった。特に、Ce:LiSAF の場合ではプローブ光が 偏光（結晶の光学軸に対して垂直に偏光）の場合では、利得は観測されなかったが、偏光で励起して 偏光のプロープ光とした場合では 1.1 と大きな利得となる大きな偏光依存性が観測された。これらの偏光依存性の傾向は、以前に報告された結果と一致する[8]。この偏光依存性の原因としては、ESA の強度に偏光依存性があることが可能性として挙げられる。

2.4 利得測定の結果に基づく $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSr}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{AlF}_6$ のレーザー発振

前節で述べた通り、Ce:LiSCAF 結晶の利得特性がポンプ・プローブ法によって測定され、290 nm 付近に利得のピークが存在することが判明した。そこで、

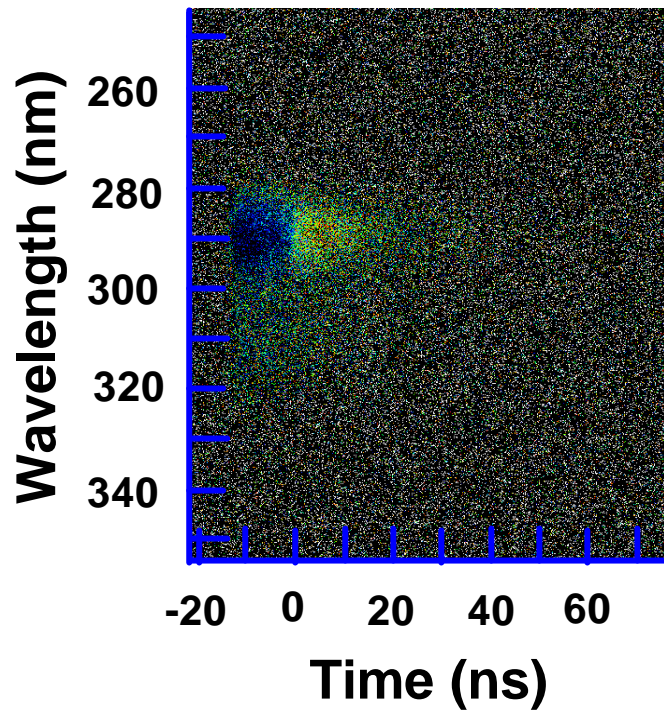


Fig. 2.3.18 Ce:LiCAF結晶の利得分布画像

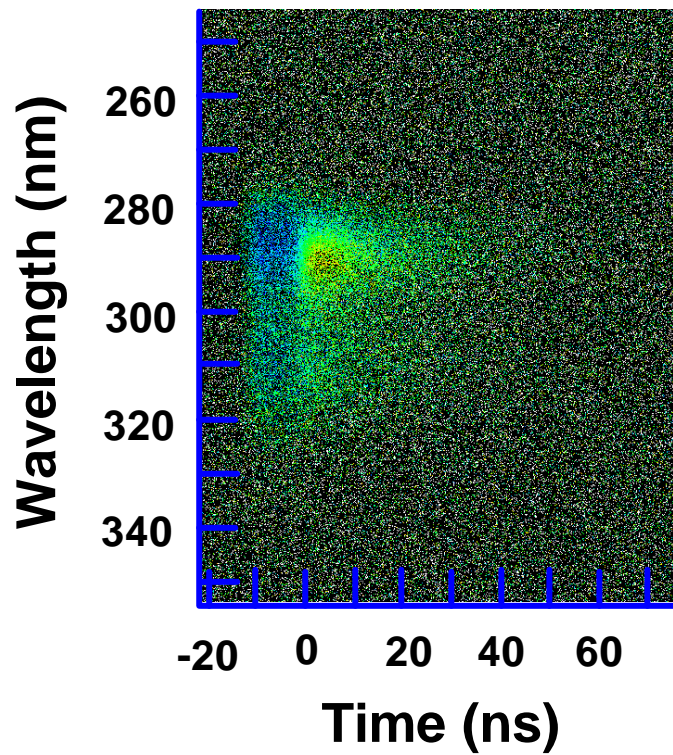


Fig. 2.3.19 Ce:LiSAF結晶の利得分布画像

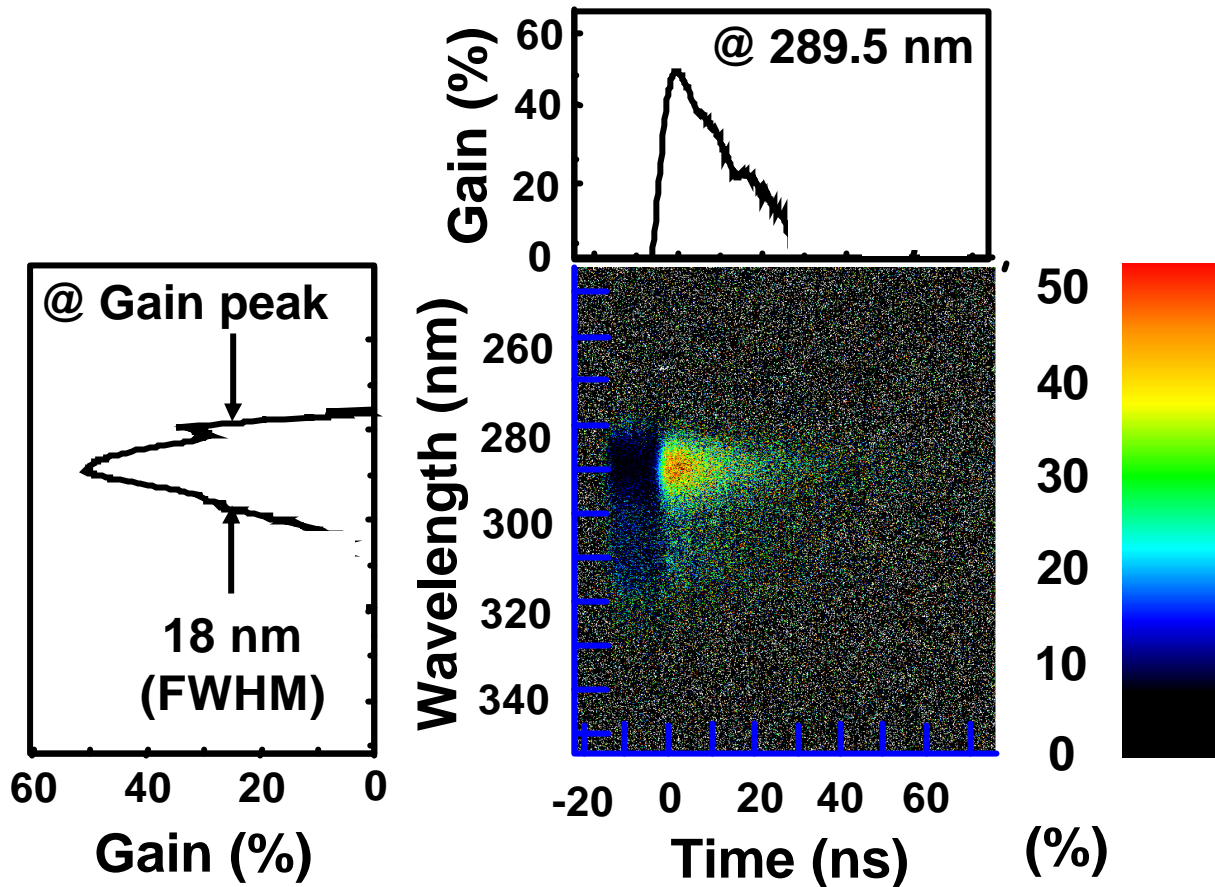


Fig. 2.3.20 新しいポンプ・プローブ法によって得られたCe:LiSCAFの利得画像とスペクトル。波長280から300 nmまでの波長領域で明瞭な利得が示された。

Table 2.3.2 新しいポンプ&プローブ法によって得られた利得スペクトル。Ce:LiCAFとCe:LiSAFの場合では 偏光で励起して 偏光のプローブ光とした場合がより高い利得が得られることがわかった。

Crystal	Probe	Pump	Gain
			0.5
Ce:LiSCAF			0.35
			0.3
			0.25
			1.1
Ce:LiSAF			0.8
			0.0
			0.0
			0.5
Ce:LiCAF			0.3
			0.45
			0.3
			0.3

この結果を元に Ce:LiSCAF 結晶のレーザー発振実験のために、1 cm の長さの結晶を用いたレーザー共振器を構築した。このときの実験配置を Fig. 2.4.1 に示す。この共振器の全長は 16 cm で、出力鏡は波長 280 nm から 320 nm で透過率 20% のものが用いられた。励起光源として Q スイッチ Nd:YAG レーザーが用いられた。励起のパルスエネルギーが 60 mJ のときに、Ce:LiSCAF 結晶による出力パルスエネルギーは 2.9 mJ であった。Ce:LiSCAF 結晶のレーザー出力を分光器で分光しストリークカメラで撮影した画像のスペクトルと時間プロファイルを求めると Fig. 2.4.2 (a)と(b) のように出力パルスの波長は、289.5 nm でパルス幅は 7.0 ns であることがわかった。

しかし、この Ce:LiSCAF 結晶はまだ開発段階であり、結晶の育成条件の最適化が不十分なこともあり、まだ Ce:LiCAF のような大きな結晶が育成可能になっていない。さらに励起強度を大きくした場合、不純物が原因と思われる結晶の劣化が確認された。従って、高出力の紫外レーザー媒質あるいは増幅媒質として Ce:LiSCAF 結晶は未熟であると言わざるを得ない。しかし、その光学的な測定の結果、Ce:LiSCAF 結晶は Ce:LiCAF 結晶や Ce:LiSCAF 結晶と良く似た特性を持っていること、具体的には Ce:LiCAF 結晶とほぼ同じ蛍光のスペクトルを持っていること、より励起光源の波長 266 nm に近い吸収波長のピークを持っていること、そしてより長い蛍光寿命を持っていること、である。これらに基づいて新たに開発されたポンプ・プローブ法を用いた利得特性評価による広帯域な利得バンド幅の存在の結果と合わせて考えると、Ce:LiSCAF 結晶は、Ce:LiCAF レーザーと組み合わせられる増幅器の媒質として有望であると考えられる。

2.5 フッ化物レーザー結晶の新しい励起チャンネル

フッ化物を用いた紫外レーザー結晶の深紫外領域での励起による利得特性を調査するために、UVSOR (分子科学研究所極端紫外光実験施設)で分光測定が行われた[9]。UVSOR では、シンクロトロン放射光を発生させ、焦点距離 1 m の瀬谷波岡分光器を用いて真空紫外領域でのスペクトル測定を行うことが可能である[10]。測定は、まず真空紫外領域での LiCAF 結晶の透過スペクトルおよび Ce^{3+} イオンをドープした LiCAF 結晶の波長 290 nm での蛍光を励起光のスペクトルについて行われた。どちらの測定も、 1×10^{-9} Torr の真空度のチャンバー内で室温にて行われた。まず、Fig. 2.5.1 は、様々なフッ化物結晶の透過スペクトルの測定結果を示している。今回は、Colquiriite 型の LiCAF 結晶、LiSAF 結晶、および透過端波長が短いことが報告され、LiCAF 結晶と同じ原料から作製された LiF 結晶の透過スペクトルが参照として、同時に測定された。LiCAF 結晶と LiSAF 結晶の透過端波長はそれぞれ 112 と 116 nm であった。特に、LiCAF 結晶の透過端波長は以前報告された LiF の透過端波長、110 nm に近い値が求められた[11, 12]。LiCAF、LiSAF 結晶の透過端波長の違いは、LiCAF 結晶にはソラリゼーション(劣化)が発生しないことに起因すると思われる。波長 130 nm 付近における透過率の低下の原因は、カラーセンターが形成されたか不純物の混入によるものと思われる。従って、結晶の品質を向上させることにより、この吸収は無くなると考えられる。同様に今回の測定で LiF の透過端波長が 138 nm と以前に

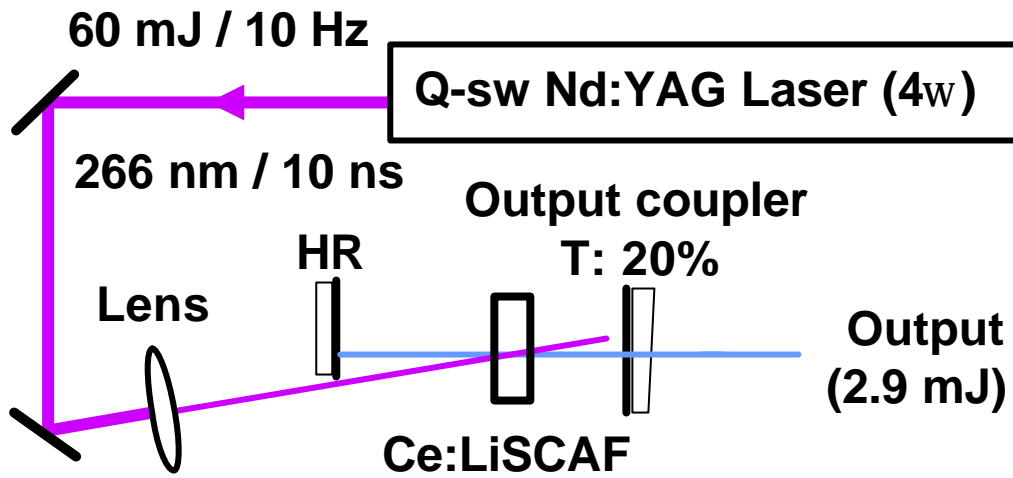


Fig. 2.4.1 Ce:LiSCAF結晶と結晶構造。共振器長は16 cmで、出力鏡は波長280 nmから320 nmで透過率20%のものが用いられた。

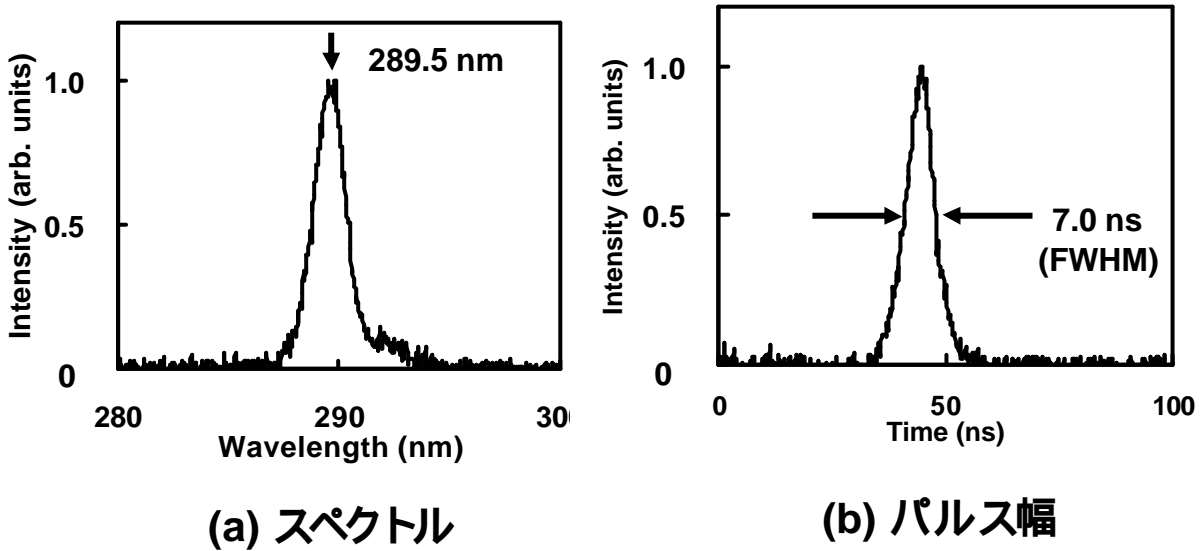


Fig. 2.4.2 Ce:LiSCAFレーザーの出力を分光器を通してストリークカメラで撮影した画像のプロファイル。中心波長(a)は、289.5 nmでパルス幅(b)は7.0 nsであることがわかった。

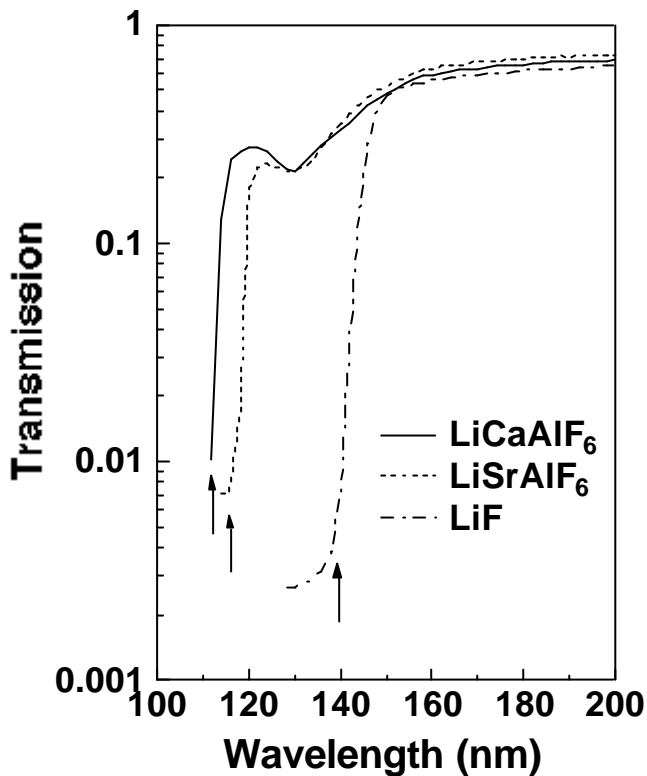


Table 2.5.1 LiCAF, LiSAFとLiF結晶の透過端波長

結晶	透過端波長
LiCaAlF ₆	112 nm
LiSrAlF ₆	116 nm
LiF (同一原料)	138 nm

Fig. 2.5.1 LiCAF、LiSAFとLiFの透過スペクトル。この結果より、LiCAF結晶の透過端波長は、112 nmということがこの結果より明らかになった。

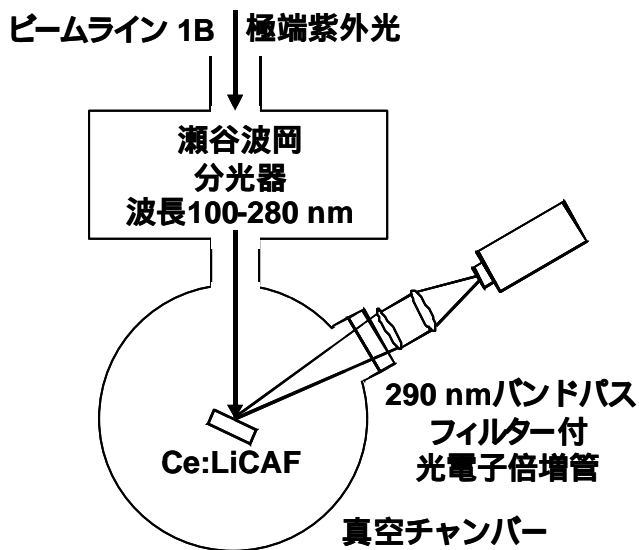


Fig. 2.5.2 Ce:LiCAF結晶の励起波長スペクトルの測定装置。Ce:LiCAF結晶による蛍光の最も強い波長290 nmでのバンドパスフィルターを通して蛍光をホトマルにて検出した。

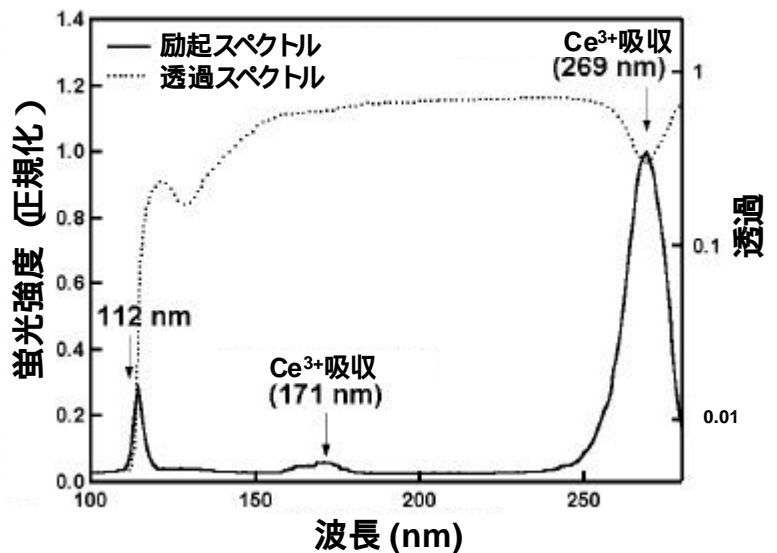


Fig. 2.5.3 Ce:LiCAF結晶の励起波長スペクトル。2つのピークはCe³⁺イオンの吸収に一致する。さらに、波長112 nmにおいても励起が可能であることが発見された。

報告された波長よりも長い結果になったのは、LiCAF、LiSAF 結晶と同じ原料から育成したので、原材料の不純物による吸収によるものと思われる。LiF は、透過端波長が約 110 nm までと短い、劈開性や吸湿性が強い実用的な面で LiCAF 結晶に劣る点があり、LiSAF 結晶は紫外光による劣化が見られる。その点、LiCAF 結晶は劈開性、吸湿性や紫外光に対する劣化が無いために真空紫外領域において光学材料として有望であると言える[13]。従って、次世代光リソグラフィの光学材料としてより重要になる可能性を秘めている[14]。測定された各結晶の透過端波長をまとめたものが Table 2.5.1 である。この測定結果より、LiCAF 結晶の透過端波長は、112 nm ということがこの結果より明らかになり、真空紫外でのレーザー結晶での母結晶として、あるいは光学材料への応用への可能性が示唆される。

そこで新しい励起波長を調査するために Ce:LiCAF 結晶の Ce^{3+} イオンによる蛍光を励起するスペクトル（励起スペクトル）が測定された。励起スペクトルの測定には、透過スペクトルを測定したときと同じ分光器を用いて、Fig. 2.5.2 のような実験配置で、蛍光の最も強い波長 290 nm のバンドパスフィルターを通して蛍光をホトマルにて検出した。測定により得られた励起スペクトルを Fig. 2.5.3 に示す。このグラフにおいて2つのピークは Ce^{3+} イオンの吸収に一致する。さらに、波長 112 nm においても励起が可能であることが発見された。これは、LiCAF 結晶において新しい励起波長の存在を示している。上記の透過端での波長と、この励起波長が一致することから、これは母結晶で吸収された電子の Ce^{3+} イオンへの移動が示唆される。これらの実験結果より、解明された緩和過程を Fig. 2.5.4 に図示する。他のフッ化物結晶についても同様の測定を行った。LiCAF 結晶の他に、LiSAF 結晶そして Ce:LiSCAF 結晶について、透過スペクトル及び励起スペクトルが測定された。これらの結果を Fig. 2.5.5 に示す。この結果より、Ce:LiCAF、Ce:LiSCAF と Ce:LiSAF 結晶は、それぞれ波長 115、118、そして 119 nm に母結晶の光の吸収による蛍光が認められ、これらは各結晶の透過端波長の 112、118 そして 123 nm とほぼ一致したことがわかる。

以上の測定結果より、 Ce^{3+} イオン添加のフッ化物結晶において、透過端波長での光励起が可能であることから利得特性の存在も示唆される。したがって、将来において真空紫外光や電子ビームでの励起により、固体紫外レーザー媒質の高利得化することができれば、現在よりも高出力化が実現される可能性がある。

2.6 新レーザー媒質利得評価法の特長

我々は、2つのレーザー媒質を用いる新しいポンプ・プローブ法を開発し、この方法を用いてフッ化物固体紫外レーザー媒質の利得を測定した。この方法は、プローブ光としてレーザー光源が必要なく、簡易に正確に利得の時間および波長領域での連続した値として媒質の利得分布が得られるので、広帯域な利得特性をもつレーザー媒質の利得評価をするために非常に有効な方法であると考えられる。この方法を用いてフッ化物結晶の利得分布を測定した。この結果より以前より指摘されてきた Ce:LiCAF 結晶の紫外領域における広帯域な利得分布が波長 290 nm を最大として確認された。また、利得の偏光依存性も評価できることも確認された。レーザー媒質の利得を測定した結果より、Ce:LiSCAF 結晶

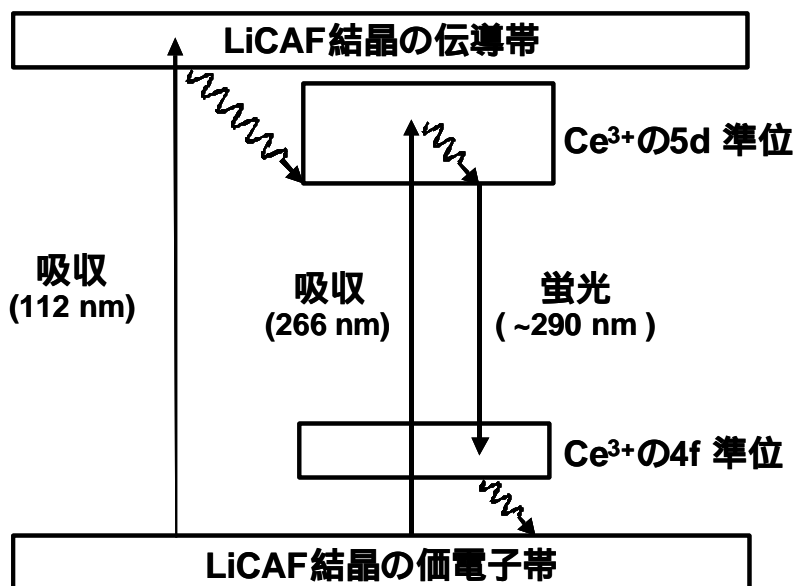


Fig. 2.5.4 Ce:LiCAF 結晶のエネルギー準位と緩和過程。母結晶で吸収された電子の Ce^{3+} イオンへの移動を意味している。

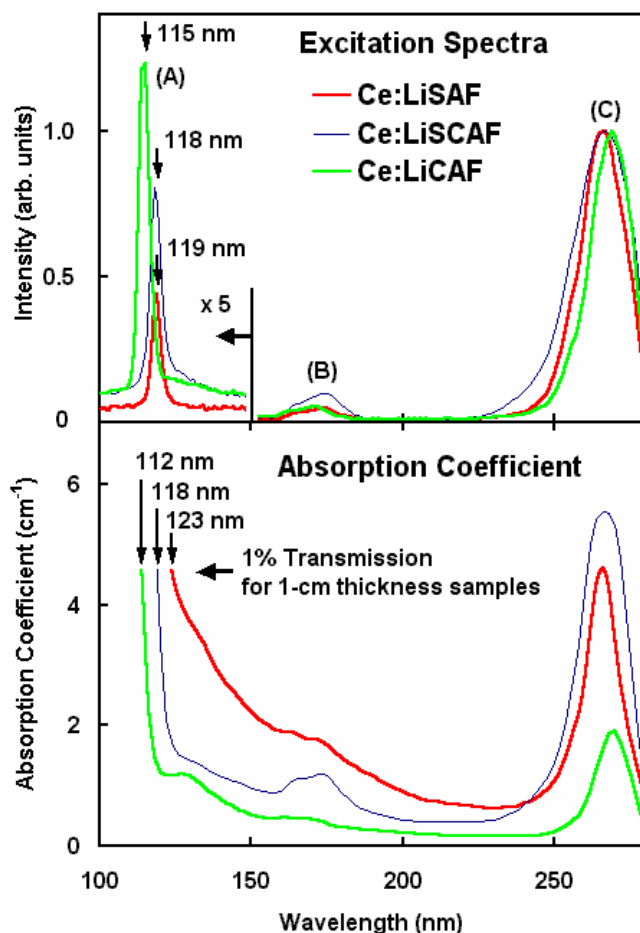


Fig. 2.5.5 Ce:LiCAF, Ce:LiSCAFとCe:LiSAF結晶の励起波長スペクトル。波長115、118、そして119 nmに母結晶の光の吸収による蛍光(A)が認められ、これらは各結晶の透過端波長の112、118そして123 nmとほぼ一致した。(B), (C)は、 Ce^{3+} イオンの吸収に一致する。

が Ce:LiCAF 結晶に匹敵する利得バンド幅を持つことが示された。この利得評価方法は、他の発振が期待されるレーザー媒質の利得や吸収の調査を容易にするであろう。

紫外超短パルス光の増幅媒質としての視点から、Ce:LiSCAF 結晶は Ce:LiCAF 結晶の利得特性に匹敵し、十分な利得帯域を持っていると言える。しかし、新規の結晶なので大きな高品質な結晶がまだ育成が困難であるために、Ce:LiSAF 結晶は励起光の紫外光照射が原因と思われる劣化が見られたこと及び、増幅媒質として利用できる大きさにはまだ十分な結晶が育成されていないことを考慮すると、大きな励起光エネルギーに耐えうる大出力の増幅器には現状として困難であると言わざるを得ない。したがって、次章で述べる紫外の超短パルス増幅器の媒質として、我々は Ce:LiCAF 結晶を利用することに決定した。

2.7 参考文献

- [1] J. Herrmann, B. Wilhelmi 著 小林孝嘉 訳, 超短光パルスレーザー, 296.
- [2] N. Sarukura, Z. Liu, Y. Segawa, K. Edamatsu, Y. Suzuki, T. Itoh, V. V. Semashko, K. Naumov, S. L. Korableva R. Y. Abdulsabirov and M. A. Dubinskii Opt. Lett. **20**, 294 (1995).
- [3] M. Iwai, Y. Mori, T. Sasaki, S. Nakai, N. Sarukura, Z. Liu and Y. Segawa, Jpn. J. Appl. Phys. **34**, 2338 (1995).
- [4] Vida K. Castillo, Gregory J. Quarles, Robert S. F. Chang, Proc. SPIE, **3929**, 129 (2000).
- [5] T. Kozeki, Y. Suzuki, Z. Liu, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano and H. Hosono, Rev. of Scientific Instruments, **72**, 2875 (2001).
- [6] M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Y. Abdulsabirov and S. L. Korableva, J. Mod. Opt. **40**, 1 (1993).
- [7] K. Shimamura, S. L. Baldochi, N. Mujilat, K. Nakano, Z. Liu, N. Sarukura and T. Fukuda, J. Crystal Growth **211**, 302 (2000).
- [8] C. D. Marshall, J. A. Speth, S. A. Payne, W. F. Krupke, G. J. Quarles, V. Castillo and B. H. T. Chai, J. Opt. Soc. Am. B, 2054, **11** (1994).
- [9] T. Kozeki, Y. Suzuki, M. Sakai, H. Ohtake, N. Sarukura, Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano and T. Fukuda, J. Crystal Growth, **229**, 501 (2001).
- [10] M. Kamada, H. Hama, T. Kinoshita and N. Kosugi, J. Synchrotron Rad. **5**, 1166 (1998).
- [11] E. D. Palik and W. R. Hunter, in: Handbook of Optical Constants of Solids, ed. E. D. Palik (Academic Press, London, 1985) 675.
- [12] 島村清史、福田承生, 応用物理, **69**, 518 (2000).
- [13] Handbook of Laser Science and Technology, ed. M. J. Weber (CRC Press, Boca Raton, Suppl. 2. **4**, 30 (1994).
- [14] T. M. Bloomstein, M.W. Horm, M. Rothschild, R. R. Kunz, S. T. Palmacci and R. B. Goodman: J. Vac. Sci. Technol. B **15**, 2112 (1997).

3. 広帯域固体利得媒質、 $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ を用いた

紫外フェムト秒のチャープパルス増幅

3.1 Ce:LiCAF レーザー

1章で述べたように、Ce:LiCAF 結晶は、 115 mJ/cm^2 と比較的高い飽和フルエンスを持っている利点もある[1]。そこで大きな結晶を用いることで高出力なレーザー出力を得ることができる。そして、2章で確認されたように、Ce:LiCAF 結晶は、紫外領域で波長 290 nm を最大に幅広い利得帯域を持っているために、これらの 2 つの特徴を生かせば超短パルスの発生も可能であると思われる。結晶の大型化に関しては、東北大学金属材料研究所において Czochralski (CZ)法により Fig. 3.1.1 に示すような大きくて高品質な LiCAF 結晶が育成可能となっている[2, 3] (付録 5.1 参照)。

この大きな結晶を用いて Ce:LiCAF レーザーは、Fig. 3.1.2 に示すようにパルスエネルギー 60 mJ が得られるほど、パルスエネルギーの高出力化は実現している[4]。この結果は、今までの Ce:LiCAF レーザーとして我々の知りうる限り、最も高出力なものであった。このときは平面全反射鏡と 30%の反射率の平面アウトプットカプラーによって間隔 4 cm の共振器が構築された。利得媒質として 1.2 mol%の濃度でドープされた大きい Ce:LiCAF 結晶(端面 15 mm、長さ 10 mm)が用いられた。励起光源として、同期して発振する 2 台の Q スイッチ Nd:YAG レーザーの 4 倍高調波が用いられた。3 本の 4 倍高調波の励起ビーム光は、焦点距離 40 cm のレンズを用いて Ce:LiCAF 結晶の表面で直径 6 mm のスポット径になるように絞られた。全励起エネルギー 230 mJ のうち 85% が吸収され、Ce:LiCAF レーザーによって波長 289 nm、繰り返し 10 Hz でエネルギー 60 mJ のパルスが得られた。直径 15 mm の利得媒質を仮定すると、波長 266 nm の 1 J の励起エネルギーで、波長 289 nm で 200 mJ を超えるエネルギーが出力されると見込まれる。

Ce:LiCAF 結晶を用いたレーザーの出力エネルギーは、これまで励起エネルギーの不足により制限されてきた。Ce:LiCAF レーザーで高出力化のためには、その励起光エネルギーである Nd:YAG レーザーの 4 倍高調波をより高出力化する必要がある。最近までは Nd:YAG レーザーの 4 倍高調波は波長変換効率が低く、高出力化が困難であった。しかし、最近開発された $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ [5] や $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ [6] のような新しい非線型結晶により、Nd:YAG レーザーの 2 倍高調波から 4 倍高調波への変換効率は、50% にも達している[5]。これらのエネルギー変換効率の見地からも、Ce:LiCAF 結晶を用いた CPA レーザーシステムは、チタンサファイア CPA レーザーシステムとの比較においても高ピークパワー出力に適していると言える。

以上で述べたように、Ce:LiCAF 結晶を利用した増幅器を開発し、紫外の超短パルス増幅を行うための技術的な条件が整ってきたことがわかる。

3.2 XeF の 3 次の自己相関による紫外フェムト秒の単パルス計測

Ce:LiCAF レーザーシステムによる紫外超短パルスの発生を確認するためには、波長 290 nm のパルス幅の計測方法が確立されなければならない。超短パルスの時間幅を測定する方法は、直接法と相関法に大別される。このうち、直接法と

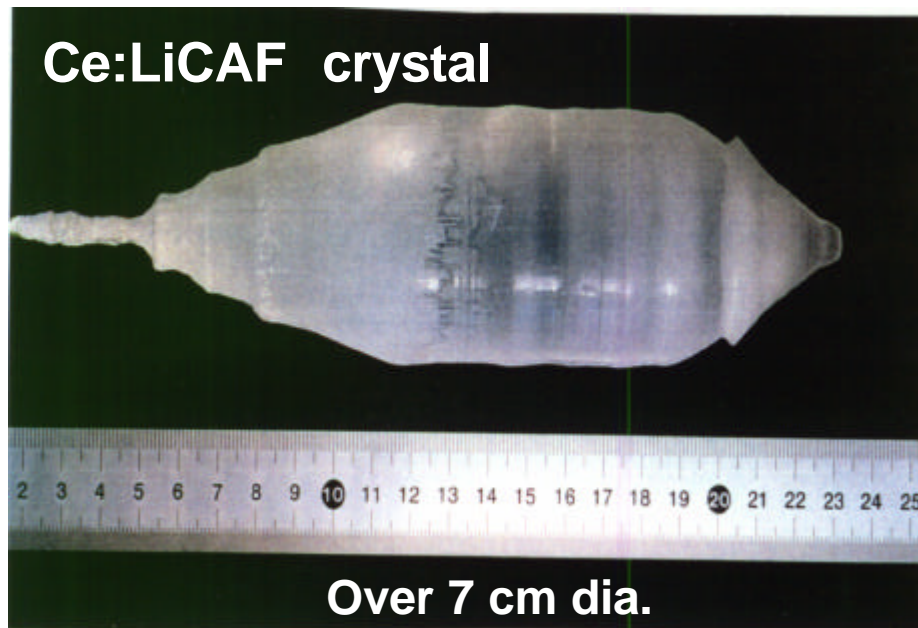


Fig. 3.1.1 Czochralski(CZ)法で育成された直径70 mmのCe:LiCAF結晶クラック、気泡やインクルージョンは一切見られない。

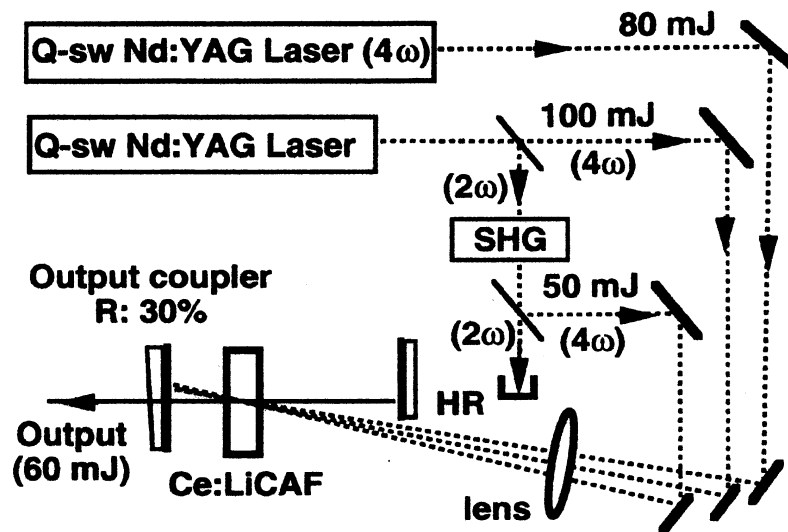


Fig. 3.1.2 出力60 mJのCe:LiCAFレーザー。全励起エネルギー230 mJのうち85%が吸収され、波長289 nm、繰り返し10 Hzでエネルギー60 mJのパルスが得られた[4]。

は、パルス光の強度を簡便に直接測定するものである。しかし、高速な半導体検出器でも 10 ps、または高速ストリークカメラでもサブピコ程度までしか測定することができない。一方、相関法は、光電変換の速度に依存せず、高い時間分解能で測定が可能である。相関法の中でも相互相関法は Ce:LiCAF レーザーシステムは繰り返し数が 10 Hz と低いため、適当ではない。FROG (Frequency-Resolved Optical Gating)法では、パルス幅のほかにパルス強度、位相などの情報を一度に測定でき、自己相関法と比較して非常に正確なパルスの評価が可能になる。しかし、測定データに対してリトリーバルと呼ばれる反復計算が必要になるため、リアルタイム性に欠ける。一方、自己相関法は、2 つに分けたパルス同士での相関を取る方法で、超短パルスの時間幅を簡便に測定する方法として広く用いられている。自己相関法としては、高調波発生や多光子吸収による蛍光を利用した方法が報告されている。2 倍高調波や 2 光子吸収による蛍光によって得られる遅延時間で重ね合わされたパルスの 2 次の相関波形 $I_2(t)$ は、次の式で表される。

$$I_2(t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t)dt + 2 \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-t)dt \quad (3.2.1)$$

$$G^2(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-t)dt \quad (3.2.2)$$

$$I_2(t) \propto G^2(0) + 2G^2(t) \quad (3.2.3)$$

ここで、 $G^2(t)$ はパルスの強度波形しか含まない関数で 2 次の強度自己相関関数と呼ばれる。また、3 倍高調波や 3 光子吸収による蛍光によって得られる 3 次の相関波形 $I_3(t)$ は、次の式で表される。

$$I_3(t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I^3(t)dt + 9 \int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t)I(t-t)dt \quad (3.2.4)$$

$$G^3(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t)I(t-t)dt \quad (3.2.5)$$

$$I_3(t) \propto G^3(0) + 9G^3(t) \quad (3.2.6)$$

これらの式より、3 次の相関波形の方が 2 次の相関波形に比べて高いコントラストの信号として得られることがわかる。

高調波発生を利用した自己相関測定法は、チタンサファイアレーザーによる超短パルス発生で SHG (Second Harmonic Generation) 自己相関測定法として広く用いられている方法である。これは、分けられたパルスの一方に遅延を与えた後、非線形光学結晶内で 2 つの光パルスを重ね合わせることで発生する 2 倍高調波を検出し、この強度と遅延量をプロットすることで得られる 2 次相関波形からパルス幅を求められるものである。この方法は、繰り返し数が高く、時間安定性が良いレーザーで精密な遅延の掃引により正確な時間幅の測定が可能であるものの、単一パルスでの測定は不可能という欠点を持っている。さらに、波長 290 nm からの高調波を発生できる非線形光学結晶はまだ存在しないため、SHG 自己相関測定法を利用することは出来ない。

一方、多光子吸収を用いた自己相関測定は、高調波による自己相関測定法に比べて簡易であり、単一パルスでの測定が可能であり、入射光偏光方向に依存しないことや、非線形光学結晶による位相整合条件を満たす必要が無いことなど

の利点がある。波長 290 nm の光の多光子吸収により蛍光を発生する物質があれば、測定が可能となる。XeF のエキシマーは、KrF エキシマーレーザー(波長: 248 nm) の 3 光子を吸収し、波長 480 nm の蛍光を発生することが報告されている。従って、本レーザーシステム実験では、XeF のエキシマーによる 3 光子吸収を用いた自己相関測定を用いることにした。この方法は、KrF レーザーシステムにより増幅された波長 248 nm での紫外フェムト秒パルスを計測するために東京大学物性研究所で開発された[7]。波長 248 nm の紫外フェムト秒パルスの時間幅は、XeF の C-A 過程の可視域での蛍光によって評価される[7, 8]。Fig. 3.2.1 は、XeF の B と C 状態を形成する緩和過程を示している。C-A 過程は、写真用レンズなど可視域の撮像光学系を用いることが出来るので、高解像力の測定に適している。入力パルスは、焦点を合わせられた後に 2 つの光線に分けられる。これらの光線は、反射された後に正確にガスセル中で焦点を結ぶ位置で衝突させられた。蛍光像は、Fig. 3.2.2, 3.2.3 の配置図の様に 2 つの写真レンズ(焦点距離 50 mm の単焦点レンズと焦点距離 50-500 mm のズームレンズおよび 2 倍のテレコンバーター)を用いて拡大され、SIT (silicon-intensified target) カメラにより撮影された。蛍光強度が、波長 248 nm のフェムト秒パルスと同様に、波長 290 nm のフェムト秒パルスによる励起も、パワーの 3 乗に依存することが確認された(Fig. 3.2.4)。これにより、波長 290 nm のパルスでも 3 光子蛍光による自己相関が観測できることが確かめられた。撮影システムの解像力は、テストパターンの撮影により 10 μm 以下のものを撮影可能であることが Fig. 3.2.5 に示すように確認された。これは、 sech^2 パルス波形としたときは 1.29 の相関幅時間幅比(付録 5.3.3 参照)なので、50 fs 以下のパルス幅に相当する値である。

3.3 高利得共焦点 4 光路 Ce:LiCAF フェムト秒パルス増幅器

共焦点の 4 光路 Ce:LiCAF 増幅器で高い小信号利得 (small signal gain) が得られることを検証するために、4 光路増幅器が可能な限り簡略化された構造で設計された[9]。高利得共焦点 4 光路 Ce:LiCAF フェムト秒パルス増幅器の実験配置図が、Fig. 3.3.1 に示されている。波長 289 nm で繰り返し 82 MHz のフェムト秒のシードパルスは、 LiB_3O_5 (LBO) ($5 \times 5 \times 3 \text{ mm}^3$) と Beta- BaB_2O_4 (BBO) ($5 \times 5 \times 3 \text{ mm}^3$) 非線型結晶を用いた cw モードロックチタンサファイアレーザーの 3 倍高調波 (THG) によって得られた。チタンサファイアレーザーが、波長 867 nm でバンド幅 11.5 nm で 1.2 W の出力の時に、3 倍高調波の出力は約 35 mW であった[10]。この増幅器は再生増幅器で用いられるような電気光学スイッチング素子を必要としない。利得媒質として濃度 1% でドープしたブリュースターカットの長さ 10 mm の Ce:LiCAF 結晶が、用いられた。増幅器は、チタンサファイア増幅器と同様に両面から同軸に励起する配置にされた[11]。増幅器は、同じ焦点距離のレンズ対(焦点距離 40 cm)によるビームウエストに配置した利得媒質と各光路に対して入射方向の高さのみを変化させてそれと平行に反射させるための誘電体反射膜を施した 2 つのルーブリフレクターから成っている。この配置を用いることで、異なる光路の光線がほとんど完全に励起された利得媒質の小さな領域に重なって伝播することを可能にしている。我々は、増幅器を励起するためにパルス幅 10 ns、繰り返し 10 Hz の Q スイッチ Nd:YAG レーザーを用いた。この

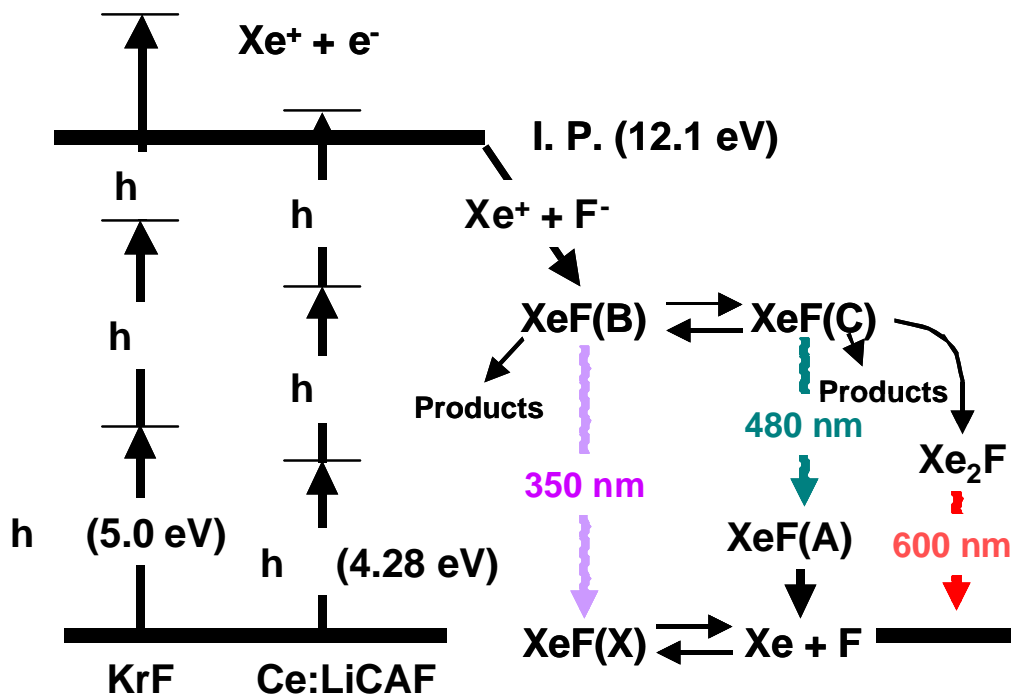


Fig. 3.2.1 XeFのBとC状態を形成する緩和過程。KrFエキシマーレーザーによる波長248 nmのパルスと同様にCe:LiCAFレーザーの波長290 nmのパルスによっても3光子蛍光を発生すると考えられる。

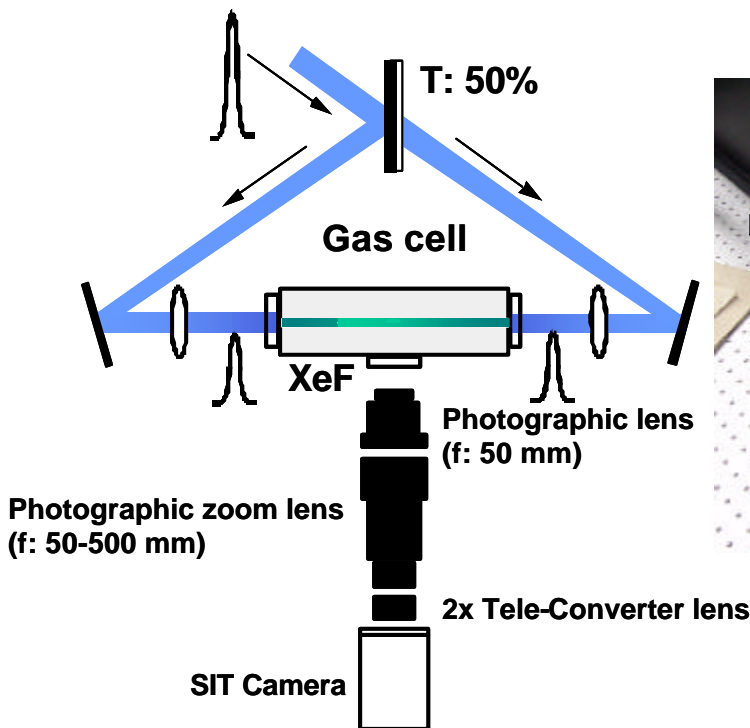


Fig. 3.2.2 本実験の自己相関法で用いられた撮影装置。焦点距離50 mmの単焦点レンズと焦点距離50-500 mmのズームレンズおよび2倍のテレコンバーターとSITカメラから構成されている。

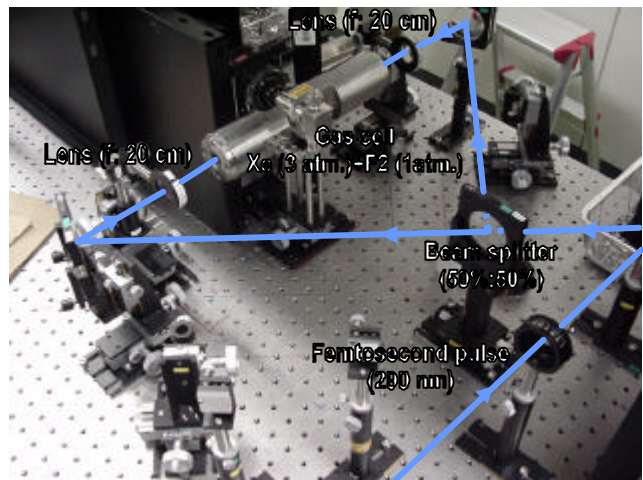


Fig. 3.2.3 本実験の自己相関法で用いられた自己相関波形撮影装置

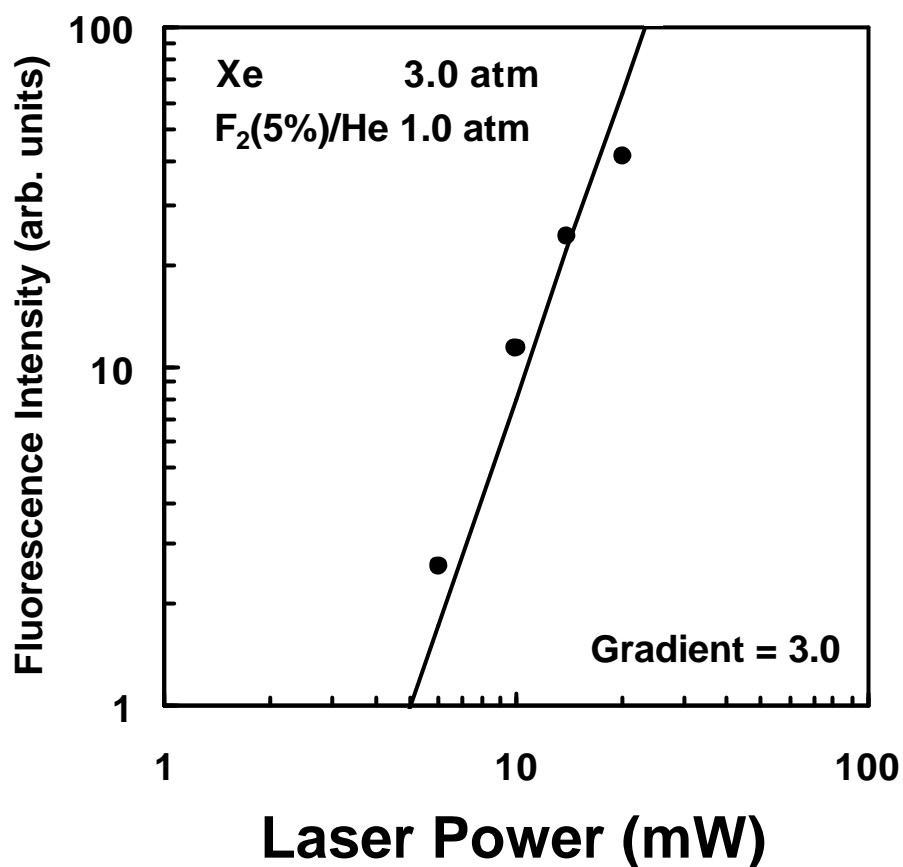


Fig. 3.2.4 3光子蛍光強度のレーザー出力による3乗依存性。蛍光の強度が、入力レーザーパワーの3乗に比例することが確認された。これにより、波長290 nmのパルスでも自己相関波形が観測できることが確かめられた。

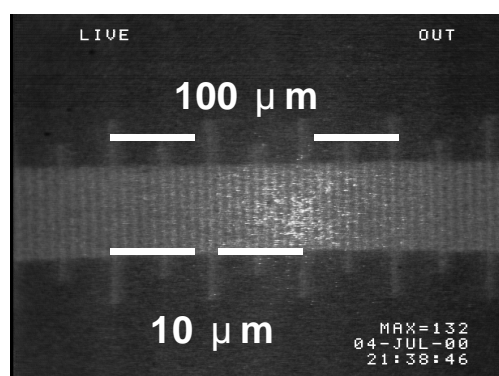


Fig. 3.2.5 撮影システムの解像力テスト。10 μmの解像力から、sech²パルス波形としたときの1.29のデコンボリューション係数とすると、50 fs以下のパルス幅が観測可能であると言える。

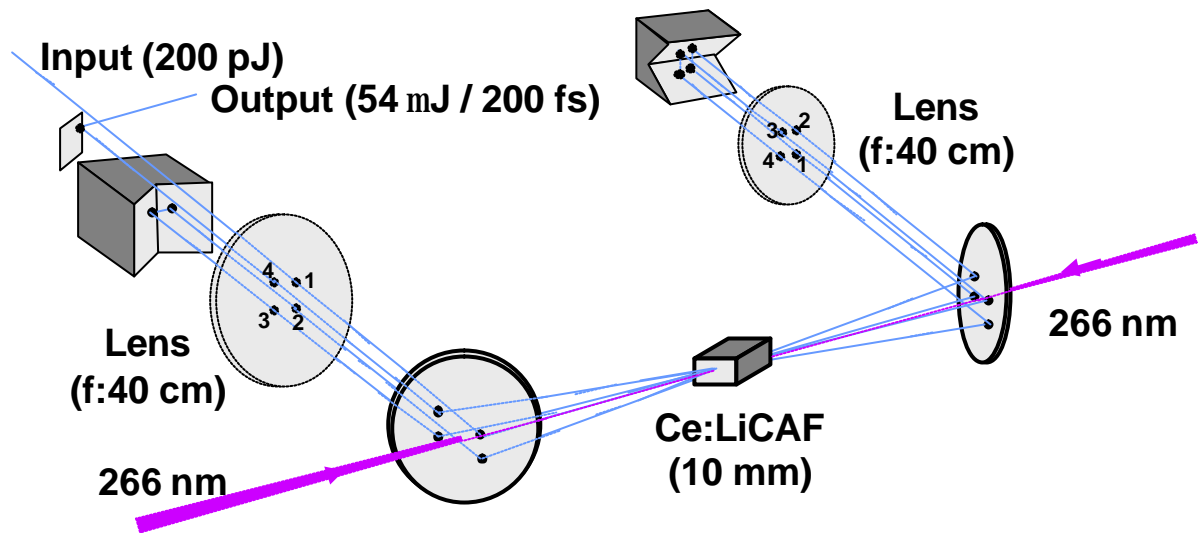


Fig. 3.3.1 高利得共焦点4光路Ce:LiCAFフェムト秒パルス増幅器の構成。Ce:LiCAF結晶を用いた増幅器で高い小信号利得が得られることを検証するために簡略化された構造で構築された。4光路での増幅器の利得は60 dBに達し、54 mJ の出力が得られた[30]。

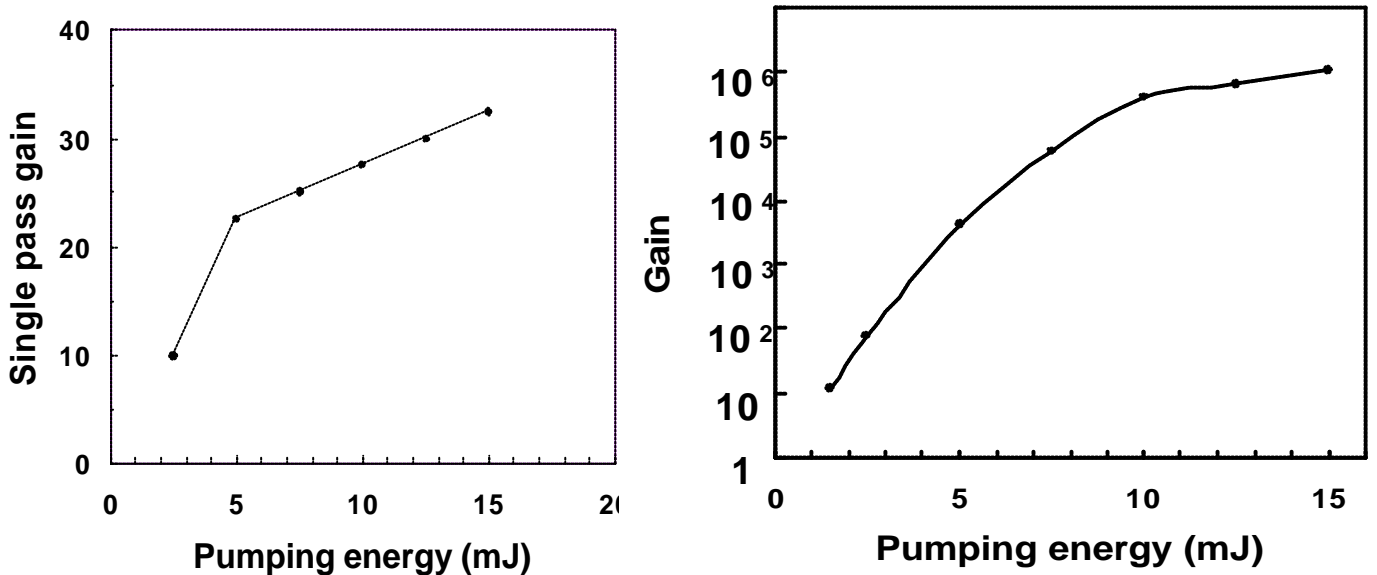


Fig. 3.3.2 増幅器による入力エネルギー利得依存性。単一光路では励起エネルギーが大きい場合、増幅利得の飽和に達している。4光路での増幅器の利得は、60 dBに達する。

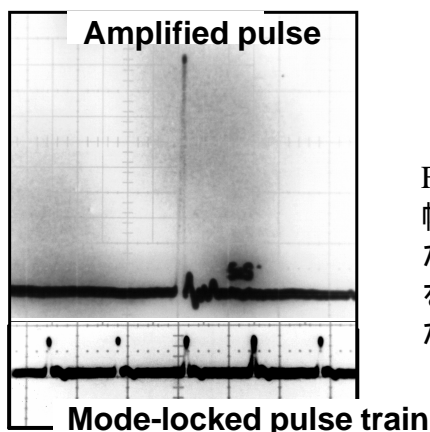


Fig. 3.3.3 54 μ Jまで増幅されたパルス。増幅されたパルスとその前後の増幅されなかったパルスとのエネルギーの比は、100を超えた。サテライトパルスは存在しなかった。

Nd:YAG レーザーは、繰り返し 82 MHz のモードロックチタンサファイアレーザーに同期しており、増幅器のシード光に対して可変な遅延を持っている。9 mJ と 6 mJ のエネルギーの励起光パルス(波長 266 nm)は、50 cm の焦点距離のレンズによって結晶中で 1.9 J/cm^2 の励起フルエンスに相当する直径 1 mm の光線になるように結晶の両端に向かって収束した。

励起エネルギーは、半波長板と検光子の組合せによって制御可能となっている。増幅器による正味の利得(励起光の有無による増幅器を通ったパルス光の信号の比)を評価するために、増幅器からのパルスはバイプラナ光電管を用いて検出された。Fig. 3.3.2 に単一光路と 4 光路の場合での励起エネルギーによる増幅利得の依存性を示す。一般的に増幅利得は、励起エネルギーが大きくなるにつれて、ASE (amplified spontaneous emission, 自発放射増幅)によって大きく影響を受け、低下する。これは、高利得増幅器において ASE が反転分布に対して入力パルスと競合してしまうことに起因すると考えられる。それゆえに、単一光路では励起エネルギーが大きい場合、Fig. 3.3.2 の様に利得の増加量が減少する。Fig. 3.3.2 で見られるように、4 光路での増幅器の利得は、60 dB に達する。この結果は、明らかに増幅利得の飽和に達していることを示している。チタンサファイアレーザー発振器の 3 倍高調波による繰り返し 82 MHz の 0.2 nJ での入力パルスは、いかなる単一パルスの選択も無く、両端励起による共焦点の 4 光路 Ce:LiCAF 増幅器によって、10 Hz の繰り返し数で平均して 54 μJ のエネルギーレベルまで増幅された。増幅されたパルスとその前後の増幅されなかったパルスとのエネルギーの比は、100 を超えた(Fig. 3.3.3)。何ら特別な単パルスの選択をしていないにも関わらず、ほとんどサテライトパルスは存在しなかった。波長 289 nm のパルス幅は、前述の XeF の C-A 遷移による可視蛍光の 3 次の自己相関によって測定、評価された。増幅されたパルスの時間幅は、200 fs であると測定された。増幅されたパルスは、0.64 nm のバンド幅を持っていた。増幅されたパルスの時間帯域幅積(time and bandwidth product)は、分散補償が無い sech^2 パルス波形であったとした場合 0.46 であった。増幅された際に目立ったスペクトルの変化は見られなかった。この増幅器の B 係数 [12] (B-integral, 高強度に起因する非線形位相遅延)は、以前報告された石英と LiCAF 結晶に対する非線形屈折率 n_2 の値から圧縮プリズムの部分を含んだとしても、約 6 であると見積もられた[13, 14]。それゆえに、共焦点で 4 光路の増幅器(CPA を除く)は、この増幅レベルにおいては十分に位相変調による波面歪みは小さいと言える。

3.4 Ce:LiCAF 結晶を用いた紫外フェムト秒のチャープパルス増幅 (CPA)

紫外領域における TW レベルまでスケールアップできる高出力エネルギーシステムのために、直径 70 mm の利得結晶の能力を十分に用いて 30 GW レベルの CPA 紫外フェムト秒レーザーシステムが設計、構築された[15]。Ce:LiCAF CPA システムの全体の実験配置図が、Fig. 3.4.1 に示されている。シード光パルスは、Ce:LiCAF レーザーからのモードロックによる超短パルスがまだ実現していないので、モードロックチタンサファイアレーザーによる超短パルスを用いることが検討された。モードロックチタンサファイアレーザーの出力のままでは、シード光としてパルスエネルギーが低すぎるので、再生増幅器により増幅した出

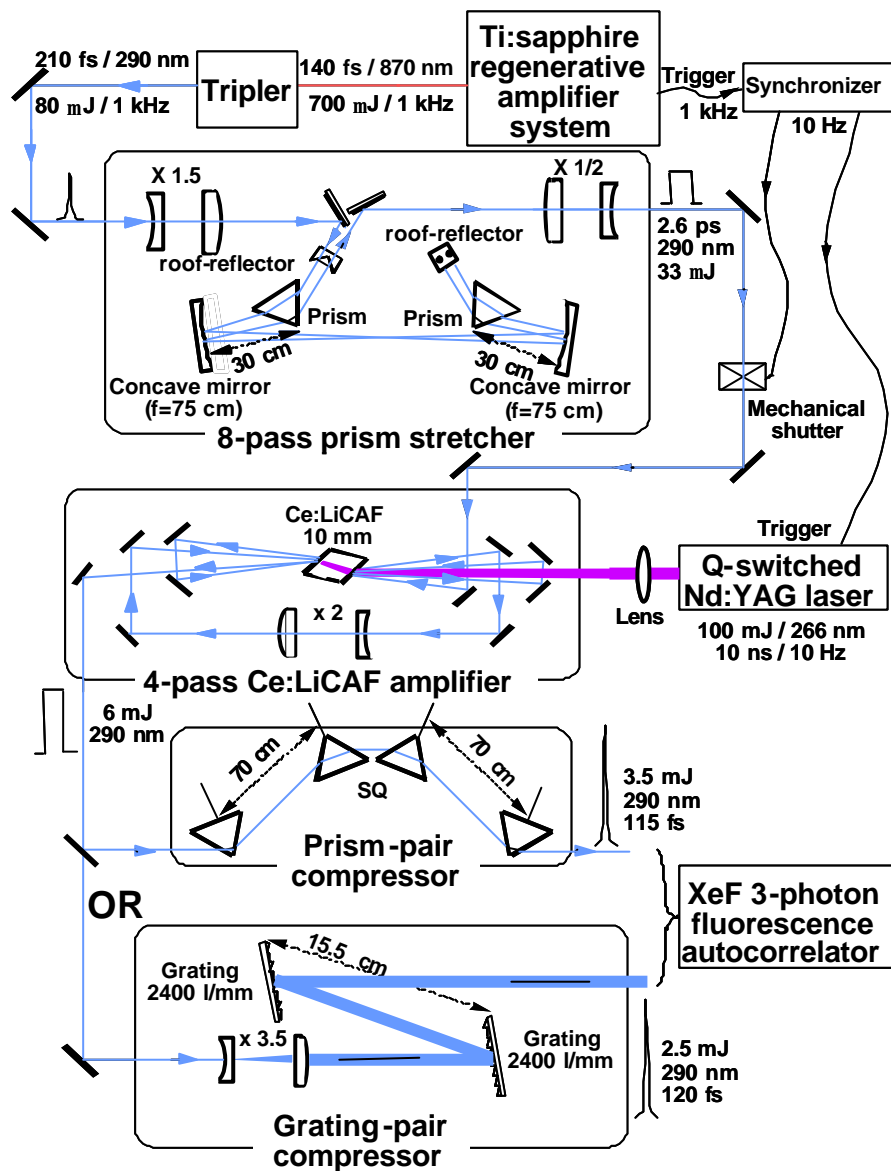


Fig. 3.4.1 Ce:LiCAF結晶を用いたCPAシステムの実験配置図。シード光としてチタンサファイアレーザー再生増幅器出力の3倍波の波長290 nm、繰り返し1 kHzのフェムト秒パルスが用いられた。

力の3倍波、波長290 nm、繰り返し1 kHzのフェムト秒パルスがシード光パルスとして用いられた。シード光のパルス幅は、210 fsであると測定され、1.0 nmのバンド幅を持っていた(Fig. 3.4.2)。シード光のパルス幅は、石英プリズムによる分散補償により、パルスが sech^2 の波形であるとする、時間帯域幅積 (time and bandwidth product) は0.5で140 fsにまで圧縮されることが可能であると予想される。

シード光は、そのまま分散補償されずに Fig. 3.4.3 の様に反射光学系を含んだ8光路の石英プリズムのパルスストレッチャーに導かれ、空間的なチャープや収差を避けて12倍のパルス幅2.6 psまで広げられた。エネルギー33 μJ の広げられたシードパルスは、機械的なシャッターにより選り出された後にボウタイ型の4光路のCe:LiCAF増幅器 (Fig. 3.4.4, 3.4.5 参照) に導かれた[16]。チタンサファイアレーザー再生増幅器と同期して動作している繰り返し10 HzのQスイッチNd:YAGレーザーによって、パルスエネルギー100 mJ、波長266 nm、パルス幅10 nsの励起パルスが与えられた。1x1x1 cm^3 の大きさのプリュースターにカットされたCe:LiCAF結晶において、82%の励起光が吸収された。励起光は、70 cmの焦点距離のレンズでCe:LiCAF結晶の十分損傷閾値($\sim 5 \text{ J/cm}^2$)以下の0.8 J/cm^2 の励起フルエンスで4 mmの直径に緩く絞られた。シード光の直径は、Ce:LiCAF結晶上で最初と2番目の入射では約1.5 mmで、3番目と4番目の入射では深い利得のクエンチや増幅器内での起こり得る損傷を避けるために約3 mmに広げられた。各光路間の光の遅延は、1.1、3.6と1.9 nsであった。最高出力エネルギーは、このシステムでは33 μJ の入力パルスに対して6 mJでの純粋な利得は180であった。これに相当するフルエンスは約90 mJ/cm^2 で、この値はCe:LiCAF結晶の飽和フルエンスに近い値である。シード光が増幅器に入力されていないときに測定されたASE(増幅自然放出)は検出限界の20 μJ 以下であった。吸収した励起光に対するエネルギー変換効率は、7.3%に達した。出力エネルギーが4.5 mJのときに、全体の利得係数は透過したパルスに対して370であった。4光路に対する利得係数はおよそ7、3、2と7であると見積もられた。利得係数の違いは、励起光とシグナル光の空間的及び時間的な重なり質に起因すると考えられる。290 nmのシード光パルスと励起光パルスの相対遅延の許容量は、10 nsであった(Fig. 3.4.6)。この値は、現在のタイミング制御におけるジッター量0.2 nsに対して十分に寛容な値である。増幅されたパルスは、わずかに広げられた1.6 nmのスペクトルを持っていた(Fig. 3.4.7)。

増幅後のパルスは、分散補償によりパルス幅の圧縮が行われる。分散補償は、70 cm間隔の2組の石英プリュースタープリズム対を伝播するか(Fig. 3.4.8)、あるいは15.5 cmの間隔の2400 線/mmの回折格子対に導かれて行われた(Fig. 3.4.9)。増幅されたパルスが、 sech^2 のパルスである想定するとそれぞれ115 fsと120 fsの幅に圧縮された。プリズム対を用いると、回折格子対に比べて損失が小さく、損傷閾値も高いが、位相の遅延が大きく波形が損なわれやすくなる。プリズム対による分散補償された場合でのパルスのスペクトルを Fig. 3.4.10 に示す。プリズム対と回折格子対それぞれのパルスは、0.66と0.69の時間帯域幅積 (time and bandwidth products)を持っていた。 sech^2 のパルスの時間帯域幅積は、0.315であるので、これらの値はフーリエ限界パルスの時間帯域幅積の約2倍で

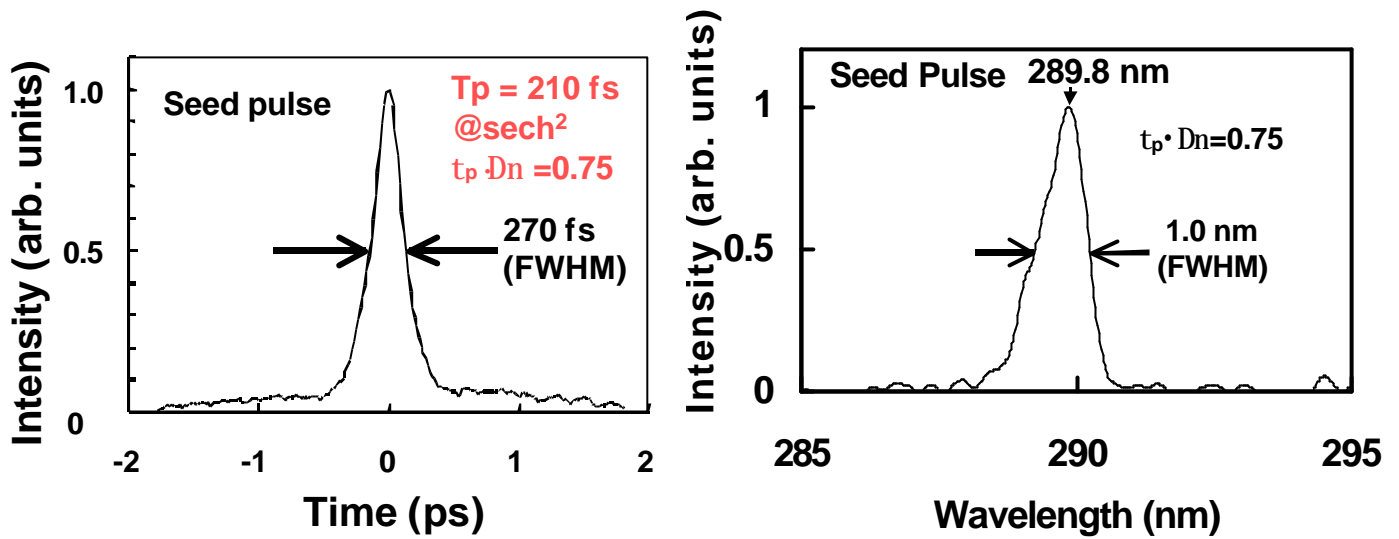


Fig. 3.4.2 Ce:LiCAF CPAシステムのシード光のパルス幅とバンド幅。パルス幅は210 fs、バンド幅は1.0 nmと測定された。

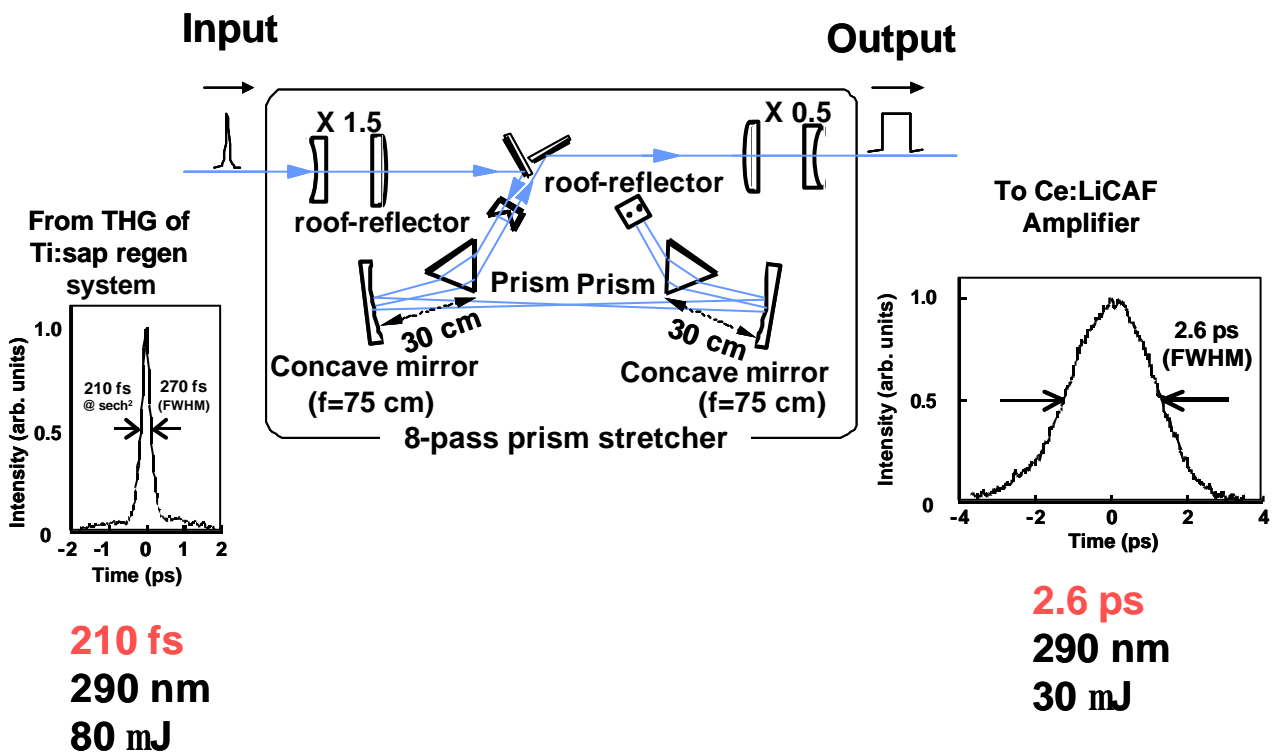


Fig. 3.4.3 8光路の石英プリズムによるパルスストレッチャー。これにより、パルス幅は210 fs から2.6 psまでパルス幅が広げられた。12倍広げられたことになる。

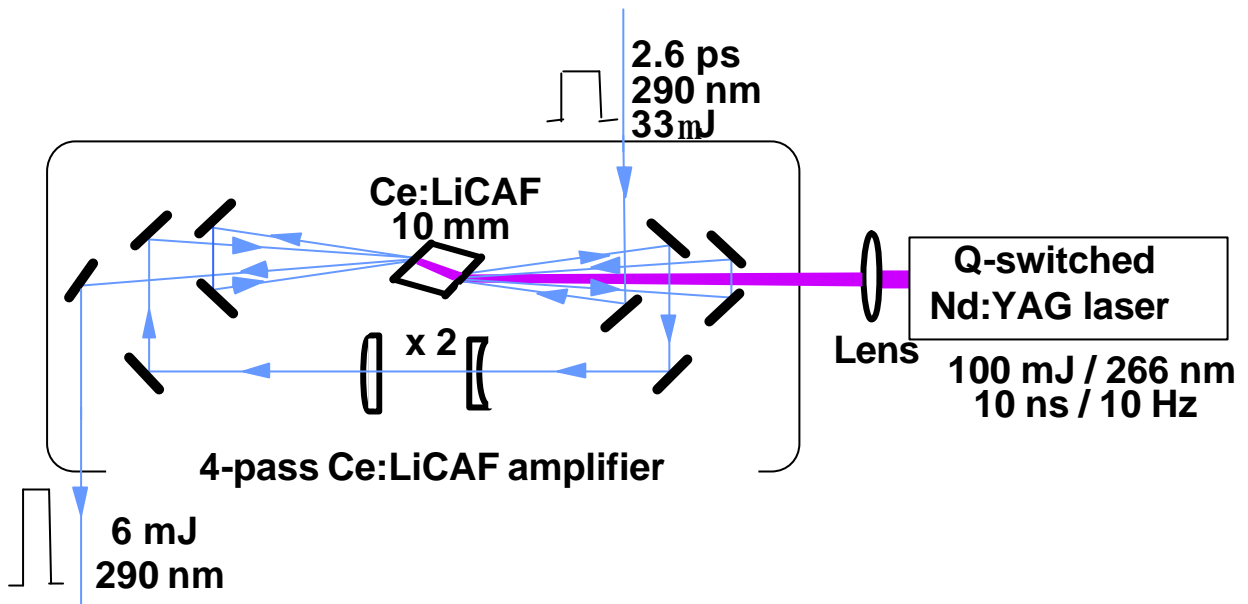


Fig. 3.4.4 ボウタイ型の4光路のCe:LiCAF増幅器。パルスエネルギー 100 mJで励起された場合、33 μ Jの入力パルスに対して180の利得で6 mJの出力が得られた。

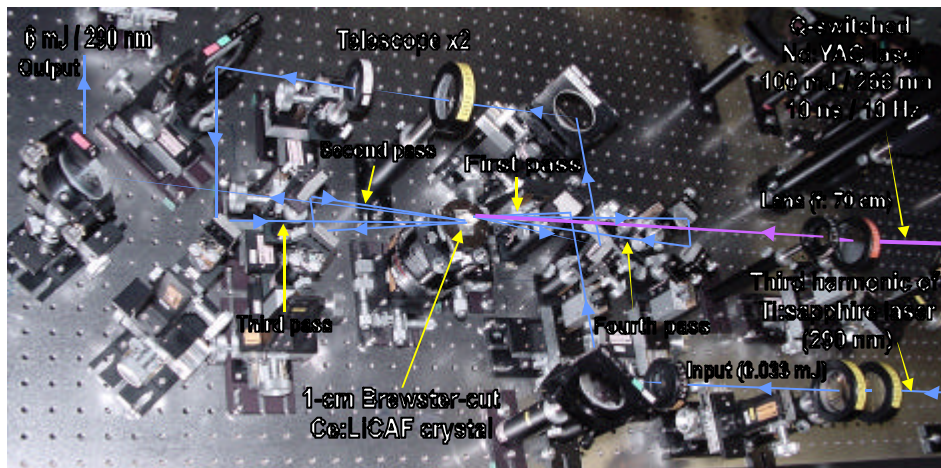


Fig. 3.4.5 Ce:LiCAFを用いた増幅器の写真

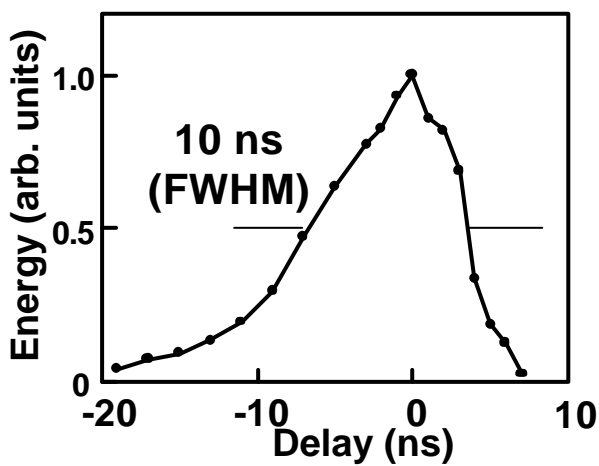


Fig. 3.4.6 シード光パルスと励起光パルスの相対遅延と出力エネルギーの関係。このグラフから相対遅延の許容量は10 nsであると判断された。

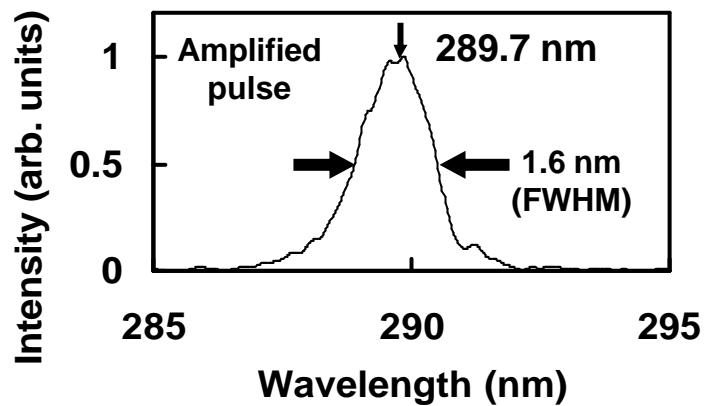


Fig. 3.4.7 増幅されたパルスのスペクトル。1.6 nmのスペクトルをもっていた。

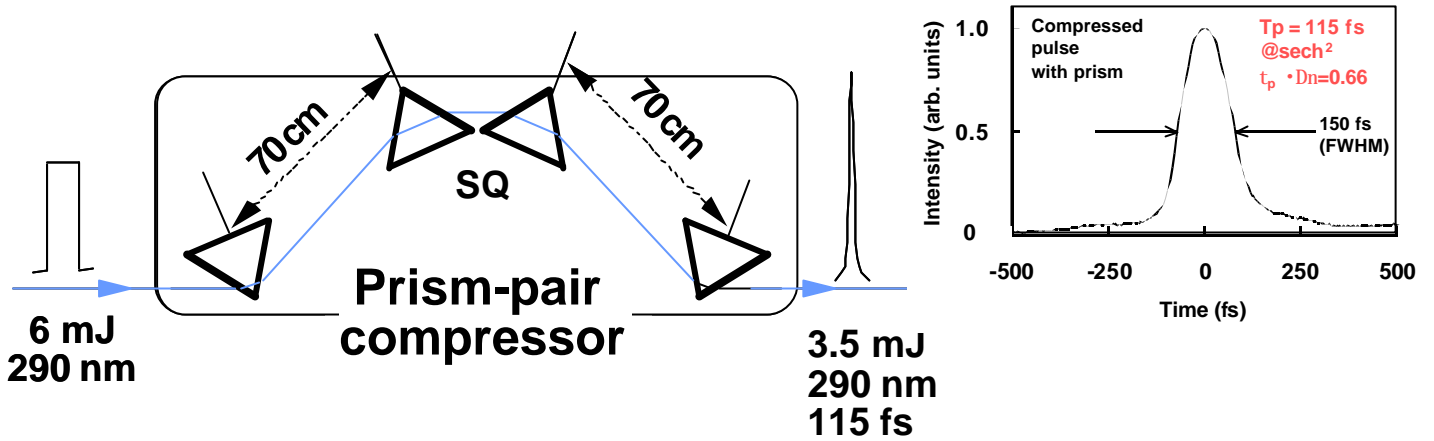


Fig. 3.4.8 プリズムによるパルスの分散補償。増幅されたパルスが115 fsに圧縮された。スループットは、60%であった。グラフは自己相関波形を示す。

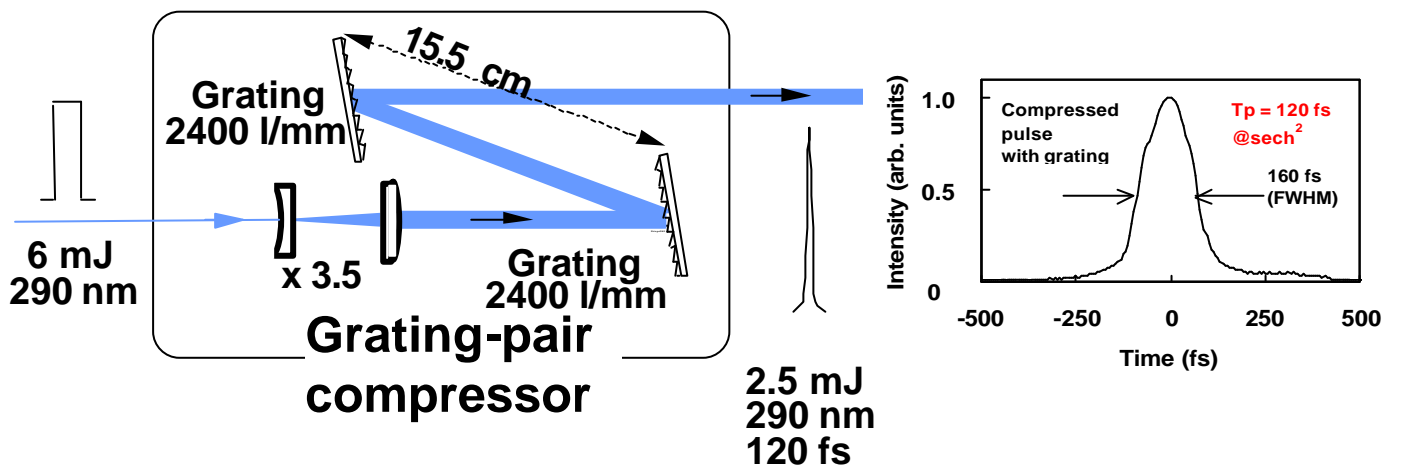


Fig. 3.4.9 回折格子対によるパルスの分散補償。増幅されたパルスが120 fsの幅に圧縮された。スループットは、40%であった。グラフは自己相関波形を示す。

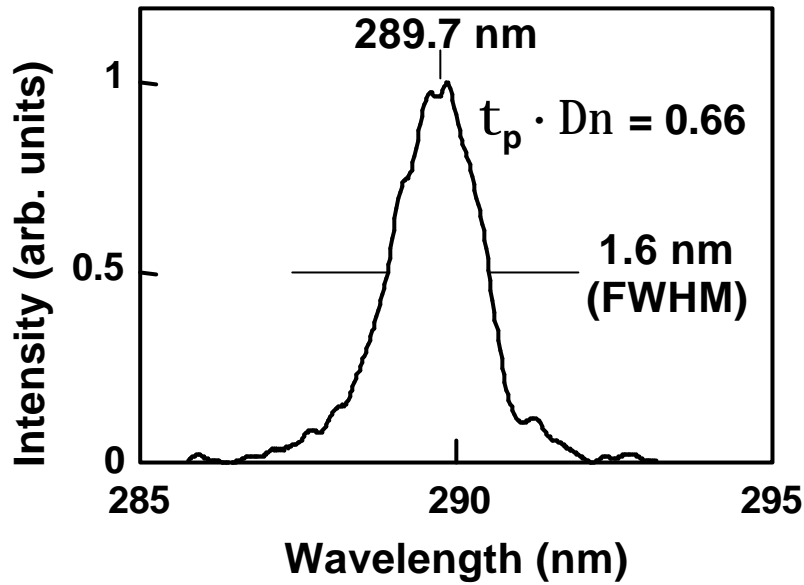


Fig. 3.4.10 分散補償されたパルスのスペクトル。時間帯域幅積(time and bandwidth products)は0.66であった。この値は、フーリエ限界パルスの時間帯域幅積の約2倍である。

Table 3.4.1 CPAでの各段階におけるパルスの時間帯域幅積 ($t \cdot \Delta\nu$)
 sech^2 のパルスの時間帯域幅積は、0.315

	$\lambda_0(\text{nm})$	$\Delta\lambda(\text{nm})$	$t(\text{fs})$	$t \cdot D_n$
シート光パルス	289.8	1.0	210	0.75
増幅されたパルスの分散補償	289.7	1.6	115	0.66
シート光パルスの分散補償	289.8	1.0	140	0.50

Table 3.4.2 本実験のCPAレーザーシステムで得られたパルス

ピーク波長	289.7 nm
時間幅 (@ sech^2)	115 fs
パルスエネルギー	3.5 mJ
出力	30 GW
スペクトル幅 (FWHM)	1.6 nm
時間帯域幅積	0.66
繰り返し数	10 Hz

ある。プリズム圧縮器を用いた場合のスループットは、60%で、回折格子圧縮器の場合は、40%であった。シード光パルスとその圧縮されたパルス、増幅後に圧縮されたパルスの各時間帯域幅積をまとめたものを Table 3.4.1 に示す。より短いパルスを得るためには、より高次の分散を補償するために、より高次の分散補償まで行うことができる圧縮器が必要になる。Table 3.4.2 に、本実験で得られた最大の出力でのパルスのパラメーターを示す。

高強度の光パルスは、媒質中を伝播すると媒質による非線形効果によって、位相遅れが生じ、光パルスの波形が歪んでしまう。そこで、この CPA システムの位相遅れを評価するための指標である B 係数を求める必要がある[10]。この値は、5 程度以下にする必要がある。B 係数は、位置 x において強度 $I(x)$ 、波長の光パルスが、非線形屈折率 n_2 の媒質中を距離 L だけ伝播した場合、次の式によって求められる。

$$B = \frac{2p}{l} \int_0^L n_2 I(x) dx$$

$$\approx \frac{2p}{l} n_2 \sum_i \frac{E_i - L_i}{A_i t_p}$$
(3.4.1)

ここで、 B は B 係数、 A はビーム断面積、 p はパルス幅、 E はパルスエネルギー、 L は伝播する距離である。上の式を用いて、増幅媒質の Ce:LiCAF 結晶での最後の増幅光路と分散補償の石英プリズムについて B 係数を求めたところ、Ce:LiCAF 結晶ではビーム断面積 0.1 cm^2 、非線形屈折率は石英と同程度とみなして $3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ 、波長は 290 nm のとき B 係数は約 1、石英プリズムではビーム断面積 1 cm^2 として 2 程度と求められた。従ってそれらの和の B 係数が約 3 という値は、十分に小さいので波形の歪みは小さいと判断できる。[11, 12]。それゆえに、パルスストレッチ比 12 は、この増幅レベルでは十分な値であると言える。さらに、100 時間以上の運転後にも Ce:LiCAF 結晶や他の光学素子には目立った劣化は観測されなかった。もし、 5 cm の直径の Ce:LiCAF 結晶が、以前に報告された励起フルエンスレベルで用いられたならば、 500 mJ を超える出力エネルギーが期待される[17, 18]。このアプローチは、全固体の紫外テラワットレーザーシステムの可能性を開くものになるであろう。現段階では、レーザー出力は励起レーザーの出力のみによって制限されている。利得媒質の利得バンド幅は十分にこのシステムでは利用されているとは言えないため、より短いシード光とより高次の分散補償によりさらに短い 10 fs 程度のパルス幅が達成できるであろう[19]。

3.5 大開口 $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ 結晶を用いたパワー増幅器の開発

前節で述べたように、Ce:LiCAF 結晶 ($1 \times 1 \times 1 \text{ cm}^3$) を用いた紫外領域における最初の出力 30 GW に達するチャープパルス増幅 (CPA) が行われた。一方、直径 7 cm を超える Ce:LiCAF 結晶の育成も可能になっている[20, 21]。TW レベルの紫外全固体レーザー実現のための問題点は、紫外領域で高パワーのパルスを取り扱うことのできるパワー増幅器の幾何学的な設計である。この節では、TW

出力のレーザーシステムを目指した同軸励起の 98 mJ のパルスエネルギーと 25% のエネルギー取り出し効率を実現した大開口パワー増幅器について述べる。

Ce:LiCAF 同軸励起大開口往復光路増幅器の実験配置図が、Fig. 3.5.1 に示される。この増幅器の評価のために、一般的な Ce:LiCAF をレーザー媒質とした主共振器とプリアンプによって、波長 290 nm でパルスエネルギー 13 mJ、パルス幅 3 ns のシード光パルス (Fig. 3.5.2) が発生された。増幅器の媒質として直径 7 cm の Ce:LiCAF 結晶ブールより大型のブリュスター板型の利得媒質 (大きさ $1 \times 2 \times 2 \text{ cm}^3$ 、波長 266 nm で吸収係数 3.2 cm^{-1} 、波長 290 nm で吸収係数 0.2 cm^{-1}) が、切り出された。

2 章で測定された Ce:LiCAF の 20 ns の蛍光寿命と 3 ns のシード光パルスの時間幅 3 ns を考慮した結果、パルスが利得の緩和時間内に往復することと結晶中において前後のシードパルス光で時間的な重なりが無いように、2 番目の増幅光路に対して 3 ns の遅延を持つポウタイ型の往復光路の配置が採用された。このパワー増幅器を励起するために、3 台の繰り返し 10 Hz の Q スイッチ Nd:YAG レーザーの 4 倍波による、波長 266 nm、パルス幅 10 ns の 4 本の励起光が用意された。全励起エネルギーは 0.38 J に達した。励起光のうち、パルスエネルギー 182 mJ と 60 mJ のビームは Ce:LiCAF 結晶の一方の面より、残りの 75 mJ と 65 mJ のビームはもう一方の面より入射された。これらの励起光は、利得媒質面上でシード光の直径 7 mm に近い直径 8 mm になるように集光された。95% 以上の励起エネルギーが利得媒質に吸収されたので、励起エネルギー密度は 0.7 J/cm^3 に達すると見積もられる。この励起の媒質面における入射条件は、Ce:LiCAF 結晶の光学的な損傷閾値 ($\sim 2 \text{ J/cm}^2$) にはまだ十分な余裕がある。

入力される波長 290 nm のシード光パルスと励起光パルスとの間の相対的な遅延許容量は、Fig. 3.5.3 に示されているポンプ光パルスに対するシード光パルスの遅延量と出力エネルギーの依存性のグラフから 11 ns であることが分かった。この値は、電気的に制御するには十分な許容量である。Fig. 3.5.4(a) に示される入力エネルギーに対する出力エネルギーの依存性から解るように、利得の飽和が明確に観察された。Frantz-Nodvik の関係式から小信号利得と飽和フルエンスは、39 倍と 77 mJ/cm^2 であると見積もられた[22]。利得の分布が媒質中で均一であるとしたときの様々なポンプ密度に対する小信号利得も Fig. 3.5.4(b) に示される。媒質で利得の緩和が十分に遅いという仮定に基づいた理論モデルでは、20 ns の蛍光寿命、4 ns の 2 番目のパルスでの光学遅延、および 8 ns の励起光パルス幅という点を考慮して適用されなければならない。以前に報告された誘導放出断面積から見積もられた飽和フルエンスは 115 mJ/cm^2 であった。この値との差は、Frantz-Nodvik の関係式の簡略したことに起因すると思われる。しかしながら、この実際の利得の飽和は TW レベルの CPA レーザーシステムの設計には不可欠であろう。プリアンプからの 13 mJ のシード光パルスに対して Ce^{3+} イオンに 7.7 mJ が吸収され、その際の増幅器からの出力エネルギーは、最大で 98 mJ にも達した。このときのエネルギー抽出効率は 25% に達した。増幅器にシードパルスを全く入力しない場合での ASE (amplified spontaneous emission) は、検出限界の $10 \mu\text{J}$ 以下であった。このパワー増幅器のエネルギー抽出効率は現在の光学配置での理論限界の 83% に達した。

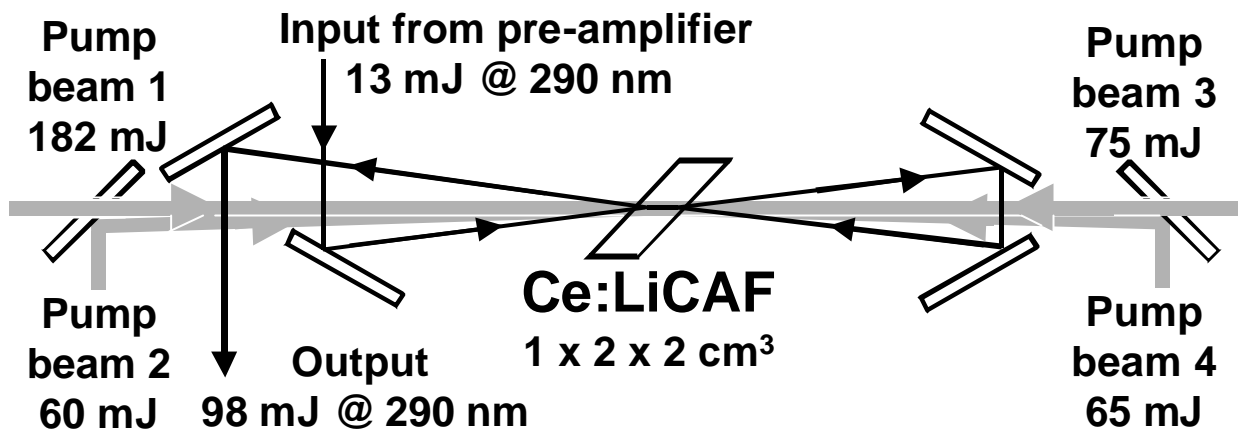


Fig. 3.5.1 同軸励起による大開口往復光路増幅器の実験配置図。利得媒質は、Brewster板型で大きさは1 x 2 x 2 cm³である。波長266 nmで3.2 cm⁻¹の吸収係数と波長290 nmで0.2 cm⁻¹の吸収係数をもつ。

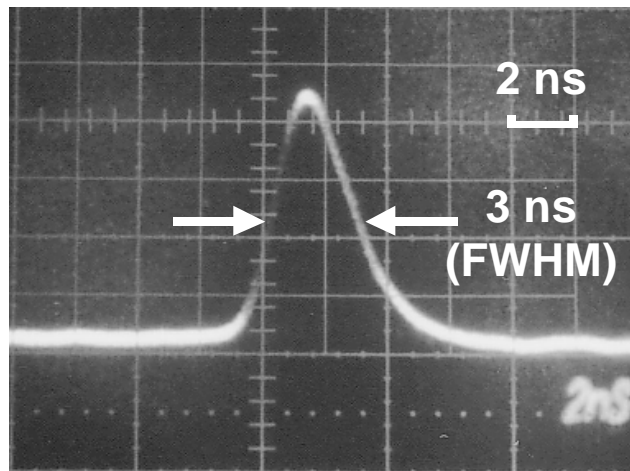


Fig. 3.5.2 波長290 nm、パルスエネルギー13 mJ、パルス幅3 nsのシード光パルス波形

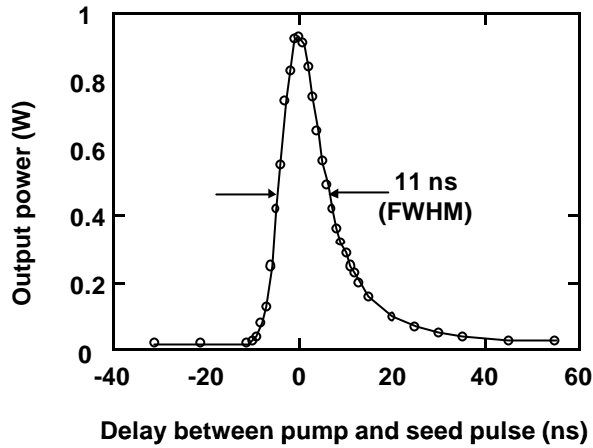


Fig. 3.5.3 増幅器のシード光パルスと励起光パルスの相対遅延出力依存性 (a)と増幅器の出力エネルギーの入力エネルギーとの依存性 (b)。相対的な遅延許容量は、11 nsであることが分かった。利得の飽和が観察された。

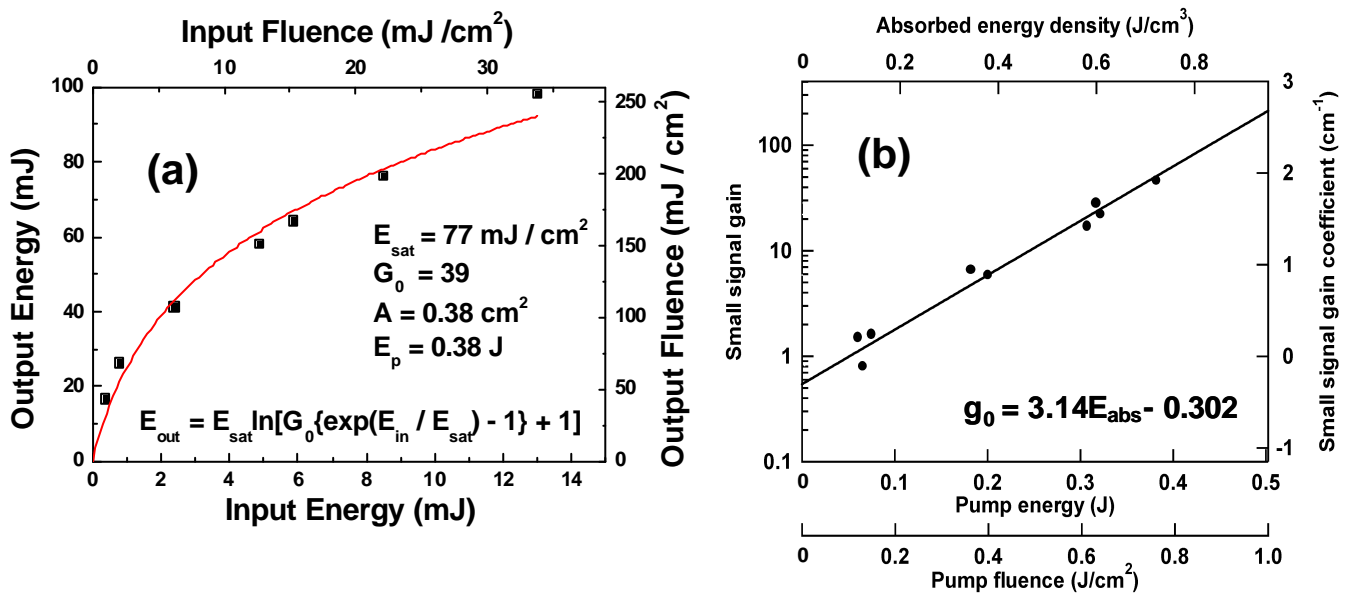


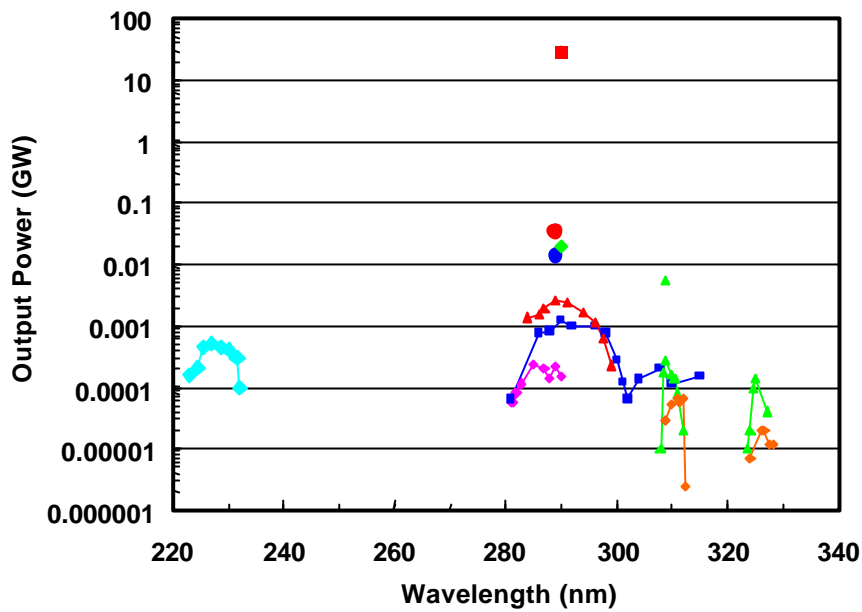
Fig. 3.5.4(a) 増幅器における入力エネルギーに対する出力エネルギーの依存性。(b)様々なポンプ密度に対する小信号利得。

他の様々なポンプ光と入力光エネルギーの組み合わせにおける出力向上を目指した設計のために、媒質の利得分布が均一であるとして異なるポンプ光密度における小信号利得係数の依存性が見積もられた (Fig. 3.5.5)。実験的に測定された結果を考慮すると、この利得媒質の損傷閾値は、波長 266 nm で 8 ns のパルスに対して 2 J/cm^2 程度であり、波長 290 nm に対する耐損傷全反射コーティングの損傷閾値は、 8 J/cm^2 である [23]。パルス幅が τ における損傷閾値 $\tau^{1/2}$ の依存性に従うとすると、30 ps のパルスに対する損傷閾値は 0.5 J/cm^2 であると思積もられた[24]。したがって、ポンプ光エネルギーが一定の場合での増幅における出力エネルギーの制限要因は、光学部品の損傷になるであろう。超短パルスを入力光とした場合、光学的な損傷がより深刻な問題となるであろう。TW CPA レーザーシステムでは、コーティングの損傷を避けるために最後の増幅光路のすぐ後にビームエキスパンダが挿入されるのが望ましいと考えられる。

同軸励起の大開口の Ce:LiCAF 結晶を用いたパワー増幅器を用いて 25% の抽出効率で 98 mJ の出力エネルギーが得られた。このパワー増幅器の性能は、TW 級の紫外 CPA 固体レーザーシステムに用いるのに十分である。現時点では、出力の更なる向上のためにはより高出力な励起光源が必要となる。現在 10 cm 以上の直径のレーザー結晶が実現可能であり、この結晶と低繰り返し Nd:ガラスレーザーの 4 倍波による 60 J の励起光源を用いれば、15 J 以上の出力可能であろう[25]。

3.6 紫外領域でのレーザーパルス増幅

直径 70 mm を超える大きさの高品質な Ce:LiCAF 結晶が、CZ 法により育成され、プリユスターにカットされた Ce:LiCAF 結晶を用いた紫外領域における 60 dB に達するフェムト秒パルス増幅が、行われた。cw モードロックフェムト秒チタンサファイアレーザー発振器の 3 倍波によるシード光とパルス幅 10 ns の Nd:YAG レーザーの 4 倍波の励起光によって、共焦点、4 光路の増幅器によって、 $54 \mu\text{J}$, 289 nm, 10 Hz のパルス光が得られた。分散補償が無い場合、増幅されたパルスは 200 fs のパルス幅を持っていた。さらに、この固体広帯域 Ce:LiCAF レーザー媒質を用いた紫外領域における初めてのチャープパルス増幅が成功した。これにより、チタンサファイア再生増幅器システムの 3 倍波のシード光は、370 倍の利得の 4 光路増幅器で 6 mJ、290 nm のパルス光に増幅された。増幅の後に分散補償されたパルスは、115 fs にまで圧縮され、ピーク出力は 30 GW に達した。この Ce:LiCAF CPA レーザーシステムの将来的な発展は、紫外領域における高ピークパワーレーザーの新しい分野を開拓するであろう。これまで、実現した紫外固体レーザー出力を波長とパワーでプロットしたものを Fig. 3.6.1 に示す。これからもわかるように、CPA システムが効率的に単位時間あたりに最もエネルギーを集中できる技術であることがわかる。将来、Ce:LiCAF CPA レーザーシステムで TW レベルに達する出力を得るためには、より高利得な増幅器、より高出力な励起光源、より高次の項までの分散補償などが必要となる要素となるであろう。このうち、より高利得な増幅器の試みとして増幅媒質である Ce:LiCAF 結晶の新しい形状による実験が行われた。これにより、最大で 98 mJ にも達し、抽出効率は 25% に達した。



- Ce:LiCAF CPA [15]
- Ce:LiCAF AMP

本研究の結果

- Ce:LiCAF MOPA 14 mJ [36]
- ◆ SFG of Ce:LiCAF & Nd:YAG [34]
- ◆ Ce:LiCAF Laser 230 mJ pumping [4]
- ◆ Low-Q Ce:LiCAF Laser [35]
- ◆ Short-cavity Ce:LiCAF Laser [35]
- ◆ Ce:LiCAF MOPA tuning [36]
- ◆ Ce:LLF laser 27 mJ KrF pumping [30]
- ◆ Ce:LLF laser with 5 Nd:YAG pumping [33]

Fig. 3.6.1 フッ化物結晶をレーザー媒質として実現した紫外固体レーザー出力の一覧。本研究のCe:LiCAFを用いたCPAレーザーシステムにより高い出力が得られたことがわかる。

以上の実験により、Ce:LiCAF 結晶を用いた CPA レーザーシステムが、赤外領域でのみでしか利得のないチタンサファイア結晶や Nd^{3+} イオンを添加した利得媒質による CPA レーザーシステムとは異なり、紫外領域で動作する新しい CPA レーザーの新しい分野を開拓するであろう[26]。このような紫外の CPA レーザーシステムは、超高出力のレーザーによる超強光電場の物理(high-field physics) [27, 28]や材料プロセス[29, 30]などを含む様々な応用分野を発展させることができるであろう。

3.7 参考文献

- [1] E. V. Browell, A. F. Carter, S. T. Shipley, R. J. Allen, C.F. Butler, M. N. Mayo, J. H. Siviter, Jr., and W. M. Hall, *Appl. Opt.* **22**, 522 (1983).
- [2] K. Shimamura, S. L. Baldochi, N. Mujilatu, K. Nakano, Z. Liu, N. Sarukura and T. Fukuda, *J. Crystal Growth*, **211**, 302 (2000).
- [3] 島村清史、福田承生, *応用物理*, **69**, 518 (2000).
- [4] [20] Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, N. Mujilatu, T. Fukuda, T. Kozeki, H. Ohtake, and N. Sarukura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, L466 (2000).
- [5] Y. K. Yap, K. Deki, Y. Kagebayashi, M. Horiguchi, Y. Mori, and T. Sasaki, *OSA TOPS, Advanced Solid-State Lasers*, **19**, 380 (1998).
- [6] R. Komatsu, T. Sugawara, K. Sassa, N. Sarukura, Z. Liu, S. Izumida, Y. Segawa, S. Uda, T. Fukuda, and K. Yamanouchi, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 3492 (1997).
- [7] N. Sarukura, M. Watanabe, A. Endoh, and S. Watanabe, *Opt. Lett.* **13**, 996 (1988).
- [8] S. Watanabe, A. Endoh, M. Watanabe, N. Sarukura, and K. Hata, *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**, 1870 (1989).
- [9] Z. Liu, T. Kozeki, Y. Suzuki, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano and H. Hosono, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, 2308 (2001).
- [10] A. Nebel and R. Beigang, *Opt. Lett.* **16**, 1729 (1991).
- [11] N. Sarukura and Y. Ishida, *IEEE J. Quant. Electron.* **28**, 2134 (1992).
- [12] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou, *IEEE J. Quantum Electron.* **24**, 398 (1988).
- [13] J. -C. Diels and W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*, Academic Press, California, 317 (1996).
- [14] G. Toci, M. Vannini, R. Salimbeni, M. A. Dubinskii, and E. Giorgetti, *Proc. of the Int. Conf. On Lasers 99*, STS Press, Mclean (VA), 18 (2000).
- [15] Z. Liu, T. Kozeki, Y. Suzuki, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano and H. Hosono, *Opt. Lett.* **26**, 301 (2001).
- [16] W. H. Knox, *IEEE J. Quantum Electron.* **24**, 388 (1988).
- [17] M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Y. Abdulsabirov, and S. L. Korableva, *J. Mod. Opt.* **40**, 1 (1993).
- [18] [C. D. Marshall, S. A. Payne, J. A. Speth, W. F. Krupke, G. J. Quarles, V. Castillo, and B. H. T. Chai, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2054 (1977).
- [19] Z. Liu, T. Kozeki, Y. Suzuki, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano, and H. Hosono, *Opt. Lett.* **26**, 301 (2001).
- [20] K. Shimamura, N. Mujilatu, K. Nakano, S. L. Baldochi, Z. Liu, H. Ohtake, N. Sarukura, T. Fukuda, *J. Crystal Growth* **197**, 896 (1999).
- [21] K. Shimamura, S. L. Baldochi, I. M. Ranieri, H. Sato, T. Fujita, V. L. Mazzocchi, C. B. R. Parente, C. O. Paiva-Santos, C. V. Santilli, N. Sarukura, T. Fukuda, *J. Crystal Growth* **223**, 383 (2001).
- [22] L. M. Frantz, J. S. Nodvick, *J. Appl. Phys.* **34**, 2346 (1963).
- [23] CVI Corporation Catalog, *Laser Optics and Coatings*, p. 164.
- [24] B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. P. Perry, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2248 (1995).
- [25] M. VanWanterghem, J. R. Murray, J. H. Campbell, D. R. Speck, C. E. Barker, I. C. Smith, D. F. Browning, W. C. Behrendt, *Appl. Opt.* **36**, 4932 (1997).
- [26] D. Strickland and D. Mourou, *Opt. Commun.* **56**, 219 (1985).
- [27] For example, Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M.

Murnane, H. C. Kapteyn, *Nature*, **406**, 164 (2000).

[28] [24] For example, T. Sekikawa, T. Ohno, T. Yamazaki, Y Nabekawa, and S. Watanabe, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2564 (1999).

[29] [25] For example, K. Kawamura, T. Ogawa, N. Sarukura, M. Hirano, and H. Hosono, *Appl. Phys. B*, **71**, 119 (2000).

[30] [26] For example, E. N. Glezer and E. Mazur, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 882 (1997).

4. 結論

レーザーの発振は波長領域の拡大と高出力化を目標にして発展し続けてきた。特に、近年のチタンサファイア結晶を用いた高ピークパワーのレーザーは、他の方法では実現し得ないような高強度場を容易に実現するものとして脚光を浴びている。超短パルスレーザーによる高強度の電磁波発生により、マテリアルプロセッシングへの応用、光と物質やプラズマとの相互作用の研究は、近年著しく進歩している。

しかし、紫外領域ではこれまでレーザー媒質の欠如のために高ピークパワーのレーザー出力の開発が阻害されてきた。この理由は、レーザー媒質を開発する上で、広範の波長領域で簡易かつ正確に媒質の利得を評価する方法が無かったからである。そこで我々は、レーザー媒質の広範囲な利得分布を簡易かつ正確に調査する方法として2つの媒質を用いる新しいポンプ・プローブ法を開発した。そして、直接紫外でレーザー発振の報告があるCe:LiCAF結晶を含むCe³⁺イオン添加されたフッ化物の利得分布が評価され、この方法の有効性が証明された。この方法を用いればレーザー媒質の利得の波長分布が一度の測定で明らかになるため、超短パルス発生などに用いられる広帯域な利得分布を持つレーザー媒質にも大変有効な方法である。

この利得評価方法では、媒質の種類によってプローブ光源をその都度用意する必要も無いので迅速な測定が可能になり、紫外領域での固体レーザー媒質の探索も効率化が図られるに違いない。実際に、新開発された固体波長可変Ce:LiSCAF結晶の利得の評価も行われ、レーザー発振も実現したことからその有効性を証明したと言える。この方法は、紫外領域や固体のレーザー媒質に限らず、他の波長領域でのレーザー媒質に対しても非常に有効な利得の評価の手段になり得るだろう。

上記の測定結果によって得られた利得帯域、最大の利得での波長などのデータを元に、増幅媒質としてCe:LiCAF結晶を用いた4光路での紫外パルスの直接増幅器が構築された。この増幅器を用いたCPAレーザーシステムが構築され、紫外領域の波長290 nmにおいてパルス幅115 fsもの紫外超短パルスを直接発生することに成功した。レーザー出力は30 GWにも達した。これにより現在まで赤外領域に限られていた固体レーザー媒質による超短パルス発生を初めて紫外領域で実現した。この紫外超短パルス出力を利用すれば、材料加工や高次高調波の発生、プラズマ中での強電場発生などの分野での紫外超短パルスの活用が進めば、新たな発見の可能性がある。

5. 付録

5.1 Czochralski (チョクラルスキー) 法

5.1.1 Czochralski 法とは

単結晶の育成する方法として、本研究のフッ化物結晶を育成する際に用いられた Czochralski 法 (以下 CZ 法) について説明する。CZ 法は、大型で高品質な結晶を作るのに、適した方法であり、半導体用のシリコン単結晶の製造を始めとして多くの結晶を育成するために用いられている。この方法は、Fig.5.1.1 に示すように坩堝中の結晶原料融液に種結晶の一端を接触させ、熱勾配を制御しながら回転させながらゆっくり上方へ引き上げて単結晶を作製するのである。単結晶を育成するには、他にもブリッジマン法などがあるが、レーザー媒質としての結晶育成を考慮すると、成長速度は速くなくても高品質なものが可能な CZ 法が最適である。

5.1.2 CZ 法による Ce:LiCAF 結晶の育成

本研究で紫外領域固体レーザー媒質として用いられた Ce イオンを添加したフッ化物結晶は、東北大学金属材料研究所福田研究室において高純度グラファイトを用いた抵抗加熱型により CZ 法で育成された (Fig. 1.5 参照)。直径 2 インチの結晶を育成するために、直径 100 mm の白金坩堝が用いられた。結晶の原料として一般に入手可能な最も高純度 (> 99.99%) の AlF_3 、 CaF_2 、 SrF_2 と LiF 粉末が用いられた。このうち、 LiF と AlF_3 は、 LiF と AlF_3 の気化を補償するために組成比よりも 1% だけ増量された。ドーパントとして高純度 (> 99.99%) の CeF_3 と NaF のパウダーが用いられた。このとき Na イオンが、電荷補償のために Ce イオンと同時にドーパされた。引き上げ速度は 1 mm/h で、結晶回転速度は、毎分 10 回転で行われた。結晶育成に先立ち、結晶育成装置を真空にした。装置は、 10^{-5} Torr 程度の真空下で 12 時間室温から 700 °C にまで加熱された。ロータリーポンプと拡散ポンプにより真空度 10^{-5} Torr を実現することで、水分と酸素をチャンバーと原材料から完全に除去することができた。その後、高純度の CF_4 ガス (99.9999%) が少しずつ坩堝に注入された後に、約 820 °C で原材料が溶融された。Fig. 2.3.5 は、育成した直径 70 mm の Ce:LiCAF 結晶の写真である。クラック、気泡やインクルージョンは一切見られなかった [1, 2]。

5.1.3 参考文献

- [1] K. Shimamura, et al J. Crystal Growth **223**, 383 (2001).
- [2] 島村清史, 福田承生, 応用物理 **69**, 518 (2000).

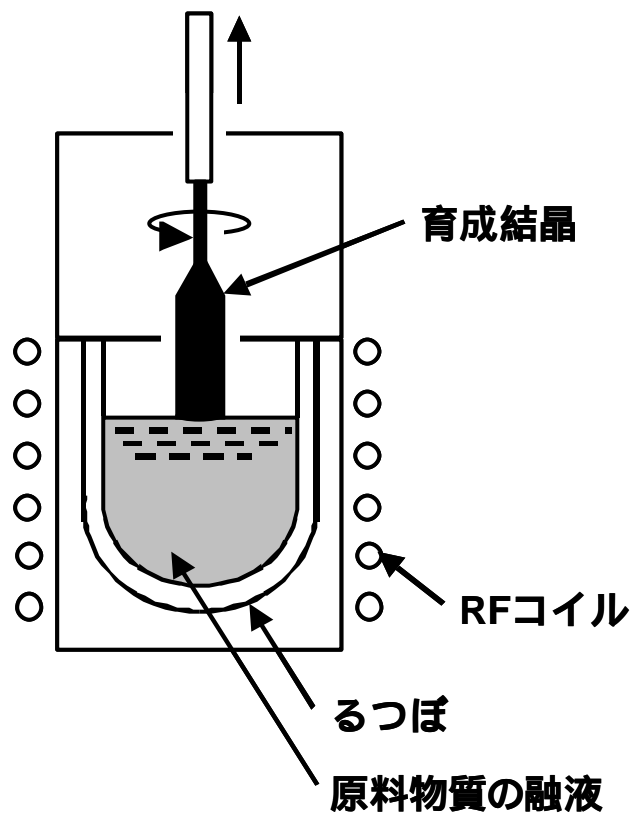


Fig.5.1.1 Czochralski 法の結晶育成装置の概念図

5.2. LiCAF 結晶の真空紫外光学材料の応用

5.2.1 LiCAF 結晶の屈折率の測定

本章で述べてきた LiCAF 結晶のレーザー媒質母結晶への応用に加え、紫外光学材料への応用も現実味を帯びてきている。ここでは、LiCAF 結晶が紫外光学材料として注目されることになった経緯について述べる。産業分野で用いられる紫外光源の短波長化が求められていることは、冒頭にも述べたが、その中でも特に短波長化へのニーズが強い、光リソグラフィ技術に絞って説明する。光リソグラフィ技術は、半導体集積回路を大量に製造するために現在主流となっている技術で、その進歩はめざましい。しかし依然として、更なる半導体集積回路の高性能化、大容量化と大量生産のために半導体プロセスの微細化が現在でも求められている。次世代の高密度な集積回路の大量生産を可能にするキーテクノロジーは、次世代光リソグラフィ技術である。次世代光リソグラフィ技術の中でもステッパー（逐次移動式露光装置）と呼ばれる製造装置が重要な位置を占めている。ステッパーとは、集積回路の回路パターンの原版（レチクル）に光を当ててそのパターンを、感光材を塗布したシリコンなどのウエハーへ縮小投影レンズを通して縮小して焼き付けることにより、パターンを転写していく装置である。現在、光源に KrF エキシマレーザーを用いたステッパーにより線幅 $0.13\ \mu\text{m}$ プロセスの半導体集積回路が製造可能となっている。半導体プロセスの線幅 d は、縮小光学系の解像力性能と光源の波長によって決まり、 $d=k\lambda/(N.A.)$ の式に従う。ここで $N.A.$ (Numerical Aperture) は、開口数であり縮小光学系の明るさを表す数値である。 λ は光源の波長、 k は半導体製造プロセスで決まる係数である。半導体プロセスの線幅を縮小するためには、 d を小さくするか NA を大きくすれば実現できることがわかる。 NA は、光学的な設計により決定され、今日では大幅な向上は見込めない。そこで、光源の短波長化により線幅の縮小を実現する方法が検討されている。この短波長化のトレンドを Fig. 5.2.1 に示す。これからも分かるように、ステッパーに用いられる光源の波長が急速に短くなってきていることがわかる[1]。将来、用いられると予想されているより短い波長、真空紫外領域で発振する F_2 レーザーや Ar_2 レーザーが光源として利用される場合ではその紫外光を透過する光学材料が必然となることは自明である。紫外領域での既存の光学材料は、石英、 CaF_2 、 MgF_2 や LiF などである[2]。このうち、 CaF_2 では、次々世代光リソグラフィで用いられる真空紫外領域の波長 $157\ \text{nm}$ の F_2 レーザーを光源にした場合、現在十分な透過率や紫外光に対する耐性の点から問題がある可能性がある。 MgF_2 は、複屈折が大きく、光学材料としては利用しにくい、 LiF は、強い吸湿性と劈開性があるため量産には不向きである。リソグラフィ用の光源と光学材料の関係をまとめたものが Table 5.2.1 である。

フッ化物結晶の多くは透過端波長が短いので紫外領域での光学材料として有望であるが、その多くの結晶は、光学的な特性が未だに未解明なものが多い[3]。従って、フッ化物結晶の中には透過波長が真空紫外領域まで短く、吸湿性と劈開性などの実用面からの特性が優れた材料がある可能性がある。そこで、本論

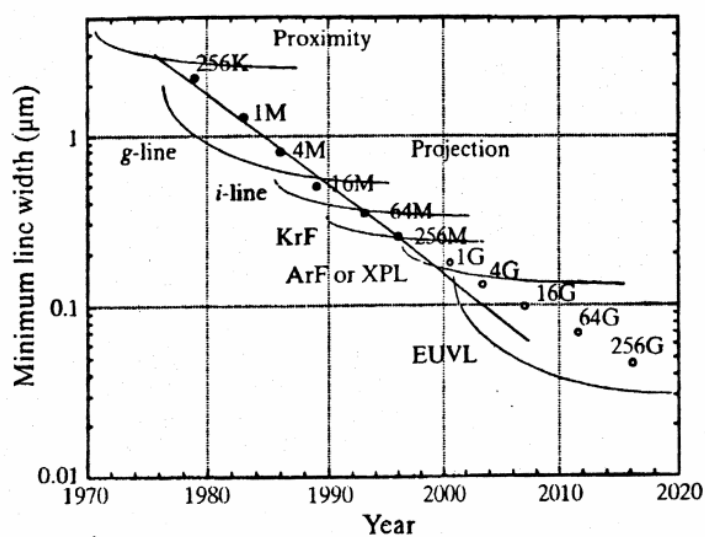


Fig. 5.2.1 半導体プロセスの微細化トレンド。現在、光源にKrF（フッ化クリプトン）エキシマレーザーを用いたステッパーにより線幅 $0.13\ \mu\text{m}$ プロセスで512MビットのDRAM (Dynamic Random Access Memory)が製造可能となっている [1]。

Table 5.2.1 光リソグラフィーのレーザー光源と波長、光学材料、線幅の関係

レーザー	KrF	ArF	F ₂	Ar ₂
波長 (nm)	248	193	157	126
光学材料	SiO ₂	CaF ₂ ?	CaF ₂ ?	MgF ₂ ?
目標寸法 (μm)	0.18	0.13	0.1	0.07

文の 1.1 でも述べたようにレーザー母結晶として実績がある LiCAF 結晶が光学材料として注目されたのである。Ce³⁺イオンをドープした LiCAF 結晶は、波長 266 nm の Nd:YAG レーザーの 4 倍波の紫外励起光を吸収し、波長 290 nm 付近での発振をするレーザー媒質として知られているが、今までに高出力な励起によるレーザー発振の実験において劣化は認められたことは皆無であった[4]。そして現在、東北大学金属材料研究所 福田研究室との共同研究により、Czochralski 法によって直径 4 インチの高品質な LiCAF 結晶が育成可能となっており (Fig. 1.4, 1.5 参照)、近い将来にはステッパー用のレンズをも作製するのに十分な大きさの結晶が育成可能となると期待されている[5, 6]。しかし、今までに LiCAF 結晶の詳細な基礎的・光学的な特性すら調査されていないのが現状であり、最も基本的な光学部品である単レンズすら製造されたことは無かった。

前に述べた光リソグラフィーを始め、レーザー加工など真空紫外光を発生するレーザーの応用分野は広がっている。さらに、他にも放射光や高次高調波発生など、真空紫外光を発生する手法も新たに研究されており、真空紫外光を直接観測するニーズは近年高まりを見せている[7-9]。紫外領域や X 線領域では、撮像装置が開発されてきたのに対し、真空紫外領域は光学素子や撮像素子の欠如などの理由によりその実現が遅れていた。しかし、前述の LiCAF 結晶が真空紫外領域において良好な光学特性を示したので、この材料からレンズを製造すれば、真空紫外光を結像できる光学系ができるはずである。さらに現在、真空紫外領域まで感度を有する撮像素子が市販されているので、これらを組み合わせることで真空紫外光を直接リアルタイムに観測する撮像装置を完成することができると考えられる[10]。この真空紫外リアルタイム撮影装置により、放射光実験装置や F₂ レーザーなどの真空紫外光を光源とした実験での、動画による記録や真空紫外光のアライメントのモニタリングなど多岐に渡る利用方法が挙げられ、可視、紫外領域では得られない貴重な画像情報を得ることができると予想され、また LiCAF 結晶の真空紫外光学材料としての可能性を示すことが出来るであろう。

東北大学金属材料研究所において CF₄ 雰囲気中で育成することにより前章で指摘されたカラーセンターが消失し、屈折率の均質性も高い十分に大きな Fig. 1.4 に示されるような LiCAF 結晶が育成可能となったことが報告された[11]。撮像素子の感度領域は波長 110 から 1100 nm で、真空紫外領域でも高い量子変換効率を持っている。これは、CCD 駆動面構造の無い面（背面）を物理的に削り、光電変換部へ直接光が入射するようにしたもので、紫外光でも変換効率を高めることにより、MgF₂ の窓のカットオフ波長までの紫外光にも撮影可能である。そこで我々は、LiCAF 結晶からレンズを作成し、上記の撮像素子と組み合わせることで、真空紫外領域で動画撮影が可能な撮影システム製作を試みた。

LiCAF 結晶を材料としたレンズを設計するにあたり、LiCAF 結晶の屈折率を知る必要があるが、今までに LiCAF 結晶の屈折率を精密に測定したという報告は無い。従って、LiCAF 結晶の屈折率測定が行われた。現在、次々世代ステッパー用の光学材料として用いられる場合、不可欠といわれる小数点以下 6 桁までの測定が可能である。Fig 5.2.2(a) の様な一辺 20 mm の 60 度分散プリズム形状の LiCAF 結晶を最小偏角法により、25°、窒素雰囲気中でゴニオメータースペ

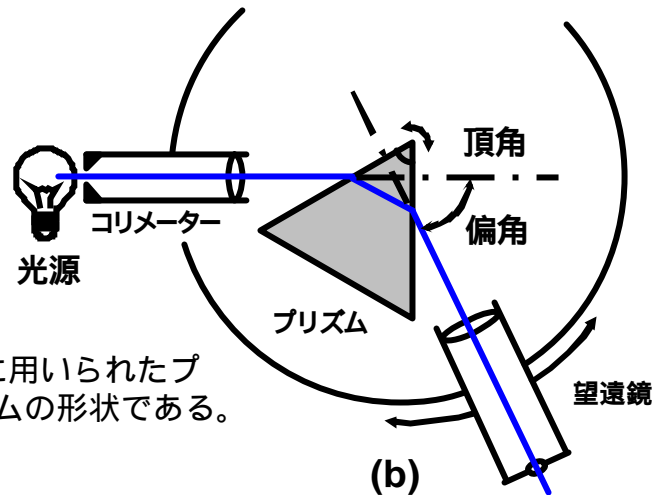
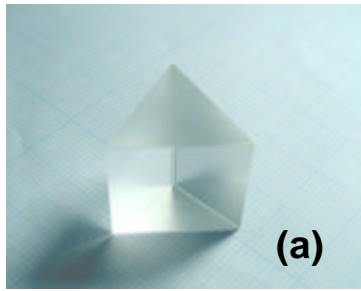


Fig. 5.2.2(a) LiCAF 結晶の屈折率測定に用いられたプリズム。一辺20 mmの60度分散プリズムの形状である。
(b) 最小偏角法の測定装置の概念図。

Table 5.2.2 LiCAF 結晶の27波長における屈折率

波長 (nm)	n_e	n_o
656.454	1.38473	1.38594
632.990	1.38508	1.38630
587.725	1.38587	1.38708
546.227	1.38674	1.38796
480.126	1.38860	1.38981
435.957	1.39033	1.39154
404.770	1.39191	1.39310
365.119	1.39454	1.39572
334.244	1.39732	1.39849
312.657	1.39980	1.40095
296.814	1.40202	1.40316
253.728	1.41062	1.41168
228.872	1.41837	1.41937
214.506	1.42443	1.42537
202.613	1.43074	1.43161
194.227	1.43612	1.43693
184.950	1.44326	1.44398
180.2940	1.44744	1.44811
177.7087	1.44996	1.45059
175.3829	1.45237	1.45297
172.3131	1.45578	1.45631
166.9231	1.46243	1.46287
162.1659	1.46917	1.46950
157.4306	1.47688	1.47708
155.2327	1.48086	1.48098
149.9371	1.49171	1.49163
148.2826	1.49554	1.49537

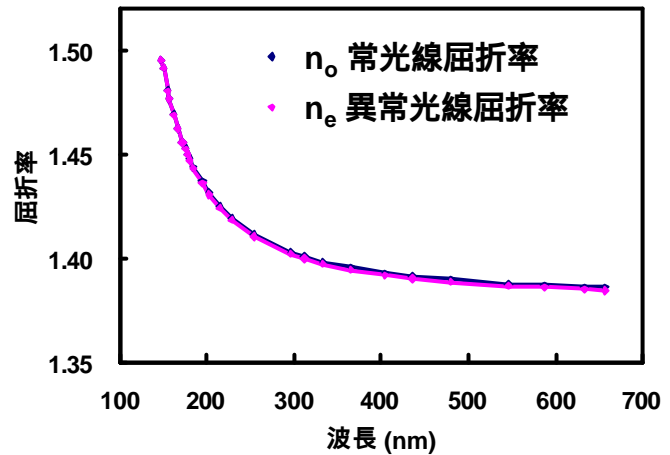


Fig. 5.2.3 LiCAF結晶の屈折率。複屈折は極めて小さい。

Table 5.2.3 LiCAF結晶のセルマイヤー方程式の係数

	n_e	n_o
A_0	1.908115731	1.911699075
A_1	-0.004028616	-0.004366289
A_2	0.004720407	0.004686344
A_3	2.64417E-05	2.73547E-05
A_4	7.12916E-07	6.29134E-07
A_5	-9.57385E-09	-7.9167E-09
A_6	1.70193E-10	1.51569E-10

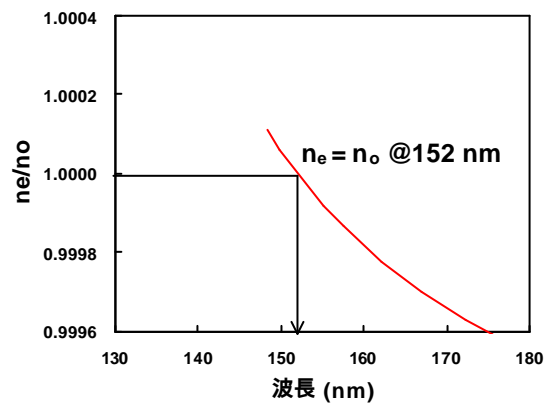


Fig. 5.2.4 常光線屈折率と異常光線屈折率の屈折率比。波長152 nm 付近において常光線屈折率と異常光線屈折率の比が1になる。

$$n^2 = A_0 + A_1 I^2 + A_2 I^{-2} + A_3 I^{-4} + A_4 I^{-6} + A_5 I^{-8} + A_6 I^{-10}$$

クトロメーターを用いて、148 nm から 656 nm までの 27 波長における、結晶の光学軸である c 軸に対して垂直に振動する常光線、c 軸に対して平行に振動する異常光線に対する 2 つの屈折率、つまり常光線屈折率と異常光線屈折率 (n_o, n_e) について行われた。最小偏角法というのは、分散プリズムによる偏角が最も小さくなる位置からそのプリズムの材質の屈折率を導き出す方法で、極めて正確な屈折率を測定することが出来る[12]。Fig 5.2.2(b)に最小偏角法の測定装置の概念図を示す。光源からの光はコリメーターで平行にされ、プリズムで屈折され望遠鏡に入射するようにその位置を回転させる。プリズムによる偏角が最も小さくなる角度にプリズムを回転させれば、最小偏角とプリズムの頂角の関係からプリズムの屈折率が求められる。プリズムの頂角は、頂角をなす 2 つの面で望遠鏡によるコリメーションから正確に求められる。プリズムの材料の屈折率 n は、頂角 θ と最小偏角 α から、次の式で求められる。

$$n = \frac{\sin \frac{a+d}{2}}{\sin \frac{a}{2}} \quad (5.4.1)$$

LiCAF 結晶のプリズムによる屈折率測定の結果を Table 5.2.2 に示す。そしてこれらの屈折率の値から、セルマイヤー方程式の係数が最小自乗法により求められた。Table 5.2.3 に求められたセルマイヤー方程式と係数を示す。この式から、波長 148 nm から 656 nm までの任意の波長について、屈折率を求めることが出来る。Fig 5.2.3 には、測定して得られた屈折率とセルマイヤー方程式による屈折率をグラフで示している。このグラフより、例えば、F₂ レーザーの発振波長 157.6 nm においては、常光線に対して 1.47679、異常光線に対して 1.47658 と求められる。測定結果から、LiCAF 結晶にわずかであるが複屈折性が認められた。また、この式より波長 152 nm 付近において常光線と異常光線の屈折率比が 1 になることが判明した (Fig 5.2.4 参照)。つまり、波長 152 nm 付近の光に対しては複屈折性が無くなるということであり、光学材料として利用しやすい波長であると言える。この波長が F₂ レーザーの発振波長 157.6 nm に近いことから、F₂ レーザーを光源としたときの結像光学系として期待される。Table 5.2.4 から判るように F₂ レーザーの発振波長における屈折率の大きさの差は 0.0002 程度であるので、結晶にドーピングをすることで、複屈折性が無くなる波長を制御して F₂ レーザーの発振波長に合わせることができれば F₂ レーザー用光学材料として大変魅力的なものになるであろう。

上記の屈折率データを元に、紫外領域に感度を有する CCD カメラに対応するレンズが設計された。CCD カメラの撮像素子のサイズ、利用できる LiCAF 結晶のサイズ、光源の波長や撮影距離を考慮し、Fig 5.2.5 のような仕様で設計された。コンピューターシミュレーションを行い、上記の条件を満たすレンズが、4 群 4 枚からなるガウス型レンズとして設計された。

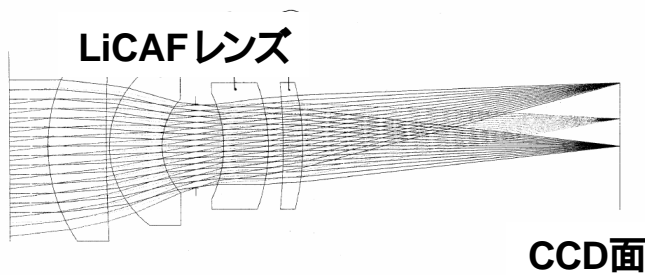
5.4.2 LiCAF 結晶の撮像光学系への応用

上記の設計を元に、実際に研磨を行って LiCAF 結晶より Fig 5.2.6 に示される 4 枚のレンズが作成された。このレンズを組み込むための筐体は、真空紫外の光

Table 5.2.4 LiCAF結晶のF₂レーザー波長における屈折率（温度：24.9-25.0度，真空中）屈折率の大きさの差は、0.0002程度であった。

波長(nm)	常光線屈折率	異常光線屈折率
157.6000	1.47679	1.47658

仕様



- 光学材料 LiCaAlF₆ (LiCAF)結晶
- 使用波長 120 nm - 200 nm
- 焦点距離 $f = 50$ mm
- 口径比 $F = 4$
- レンズ径 直径 20 mm
- 撮影距離 - 15 cm
- マウント真空フランジに対応
- 筐体 窒素パージと真空に対応

Fig. 5.2.5 LiCAFレンズの設計。上記の仕様で設計された結果、上記の4群4枚からなるガウス型レンズに決定した。

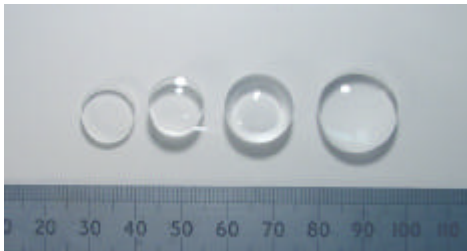


Fig. 5.2.6 4群4枚からなるガウス型レンズのために研磨された4枚のLiCAF単レンズ。

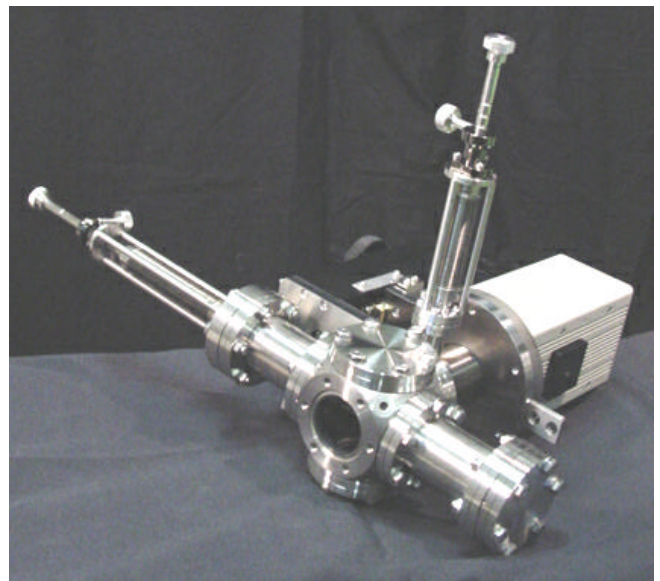


Fig. 5.2.7 LiCAFレンズを用いた真空紫外カメラの全景。

が伝播できるように内部が真空の状態になる必要がある。さらに、真空の状態を保ったまま焦点の位置、絞りの大きさそしてフィルターを変えられるようにしなければならない。以上の要求を満たすように Fig. 5.2.7 に示されるような真空紫外カメラの筐体が設計、製造された。

真空紫外カメラの筐体に LiCAF レンズを組み込んで、実際に真空紫外領域での撮影を行った。撮影対象として、フッ化カルシウムとガラス(SF6)の基板を用いた。フッ化カルシウムは、波長 130 nm 程度まで光を透過するので光源に真空紫外を用いた場合でも、光を通すはずであるが、ガラスの場合は真空紫外光を通さないために黒く映されるはずである。被写体の写真を Fig. 5.2.8 に示す。これを真空チャンバー内に設置し、後方より重水素ランプ(D2 ランプ)で照射し、真空紫外カメラで撮影した。大気圧下の状態で撮影したのが Fig. 5.2.9(a)である。重水素ランプの波長領域は、115 から 400 nm なので 200 nm 以上の波長の紫外光によってフッ化カルシウムとガラス基板を通して光源が明るく映し出されているのがわかる。この状態でチャンバー内の圧力を 10^{-4} Torr 程度の真空状態にして、真空紫外光のみを撮影するためにレンズの前に真空紫外透過フィルターを取り付けて撮影した画像が Fig. 5.2.9 (b)である。フッ化カルシウムを通して光源が、大気の場合と同様に明るく撮影されているが、ガラスは黒く写り真空紫外光が透過していないのが明確にわかる。さらに、Fig. 5.2.10 に示すように解像力チャートの撮影も大気と真空下の条件で行われた。この解像力チャートは、F₂ レーザーに対応した合成石英ガラスに金属を蒸着したもので、真空紫外光も透過する特殊なものである。このときの作動距離(レンズ先端と被写体との距離)は、560 mm であった。これらの画像より求められるこのシステムでの空間分解能は、可視領域では約 7 本ペア/mm、真空紫外領域では約 3 本ペア/mm であった。真空紫外光で撮影した方が解像力が低いのは、波長が短いためレンズの分散が大きく、焦点の位置に大きな幅を持つてしまうことが原因(可視での色収差と同じ原因)と思われる。

以上をまとめると、LiCAF 結晶が真空紫外領域において、光学材料として有望であることが証明された。LiCAF 結晶を用いて初めてレンズを作成し、これを利用した結像光学系を設計、製造して真空紫外領域でリアルタイムに撮影できるカメラを構築した。これは、LiCAF 結晶の真空紫外領域での光学材料としての可能性を示す有効なデモンストレーションになった。

5.3 参考文献

- [1] 木下博雄, レーザー研究, **27**, 20 (1999).
- [2] 笹子勝, 応用物理, **68**, 520 (1999).
- [3] Bruce. H. T. Chai, CRC HANDBOOK of LASER SCIENCE and TECHNOLOGY Supplement 2: Optical Materials, 36.
- [4] Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, N. Mujilatu, T. Fukuda, T. Kozeki, H. Ohtake, and N. Sarukura, Jpn. J. Appl. Phys, **39**, L466 (2000).
- [5] K. Shimamura, S. L. Baldochi, N. Mujilatu, K. Nakano, Z. Liu, , N. Sarukura and T. Fukuda, J. Crystal Growth, **211**, 302 (2000).
- [6] 島村清史、福田承生, 応用物理, **69**, 518 (2000).
- [7] K. Kondo, N. Sarukura, K. Sajiki, and S. Watanabe, Phys. Rev, **A47**, R2480 (1993).

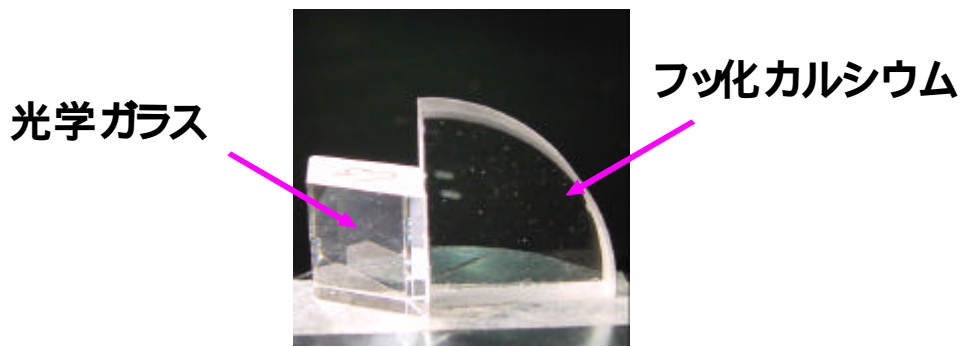


Fig. 5.2.8 真空紫外撮影実験の被写体。フッ化カルシウムとガラス(SF6)の基板を並べたものである。

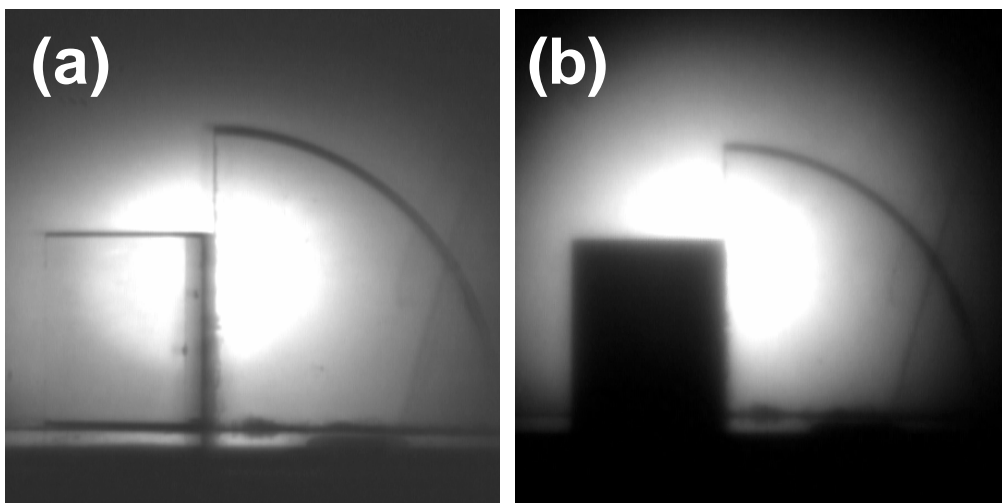


Fig. 5.2.9 真空紫外カメラによる撮影画像。(a)は、可視領域での画像、(b)は、真空紫外領域での画像である。真空中ではフッ化カルシウムを通して光源が、大気の場合と同様に明るく撮影されているが、ガラスは黒く写り真空紫外光が透過していないのが明確にわかる。

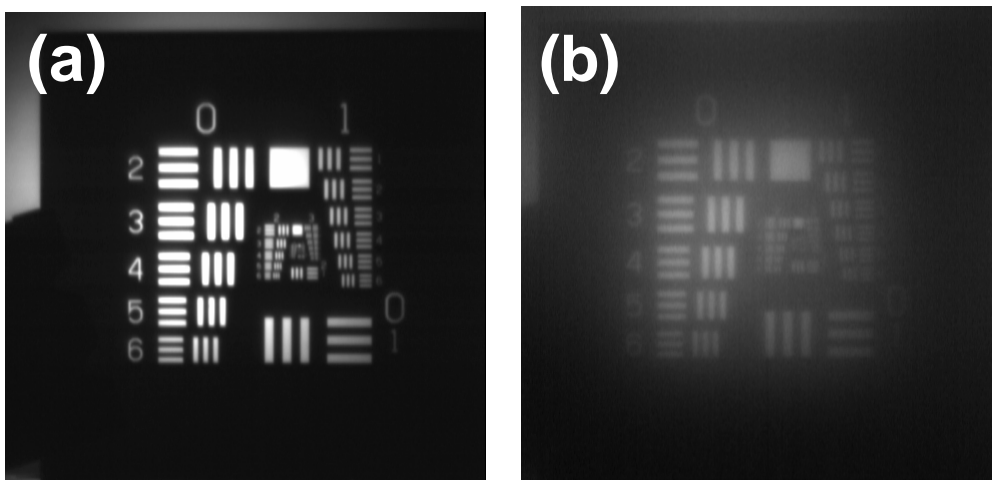


Fig. 5.2.10 解像力チャートの撮影。(a)は、可視領域での画像、(b)は、真空紫外領域での画像である。この解像力チャートは、 F_2 レーザーに対応した合成石英ガラスに金属を蒸着したもので、真空紫外光も透過する特殊なものである。可視領域では約7本ペア/mm、真空紫外領域では約3本ペア/mmであった。解像力の差はフィルターに起因すると思われる。

- [8] J. H. C. Sedlacek and M. Rothschild, Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng., **1835**, 80 (1993).
- [9] V. Liberman, M. Rothschild, J. H. C. Sedlacek, R. S. Uttaro, A. K. Bates and C. Van Peski, Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng., **3578**, 2 (1999).
- [10] <http://usa.hamamatsu.com/sys-industrial/c8000/>
- [11] K. Shimamura, S. L. Baldochi, I. M. Ranieri, H. Sato, T. Fujita, V. Mazzocchi, C. B. R. Parente, C. O. Paiva-Santos, C. V. Santilli, N. Sarukura and T. Fukuda, J. Crystal Growth, **223**, 383 (2001).
- [12] 吉田正太郎, 光学機器大全, 98.

5.3 相関幅時間幅比の導出

自己相関測定法による超短パルスの時間幅測定では、測定によって得られる強度自己相関関数から実際のパルス幅を求める。この際、強度自己相関関数とパルス幅の比は、パルスの形状によって異なるためパルス波形の関数を仮定する必要がある。本研究における超短パルスの計測は、XeF のエキシマーの蛍光を利用した 3 次の自己相関によるものなので、3 次の相関幅時間幅比を用いる必要がある。

超短パルス波形を sech^2 パルス波形としたときの 2 次の場合の相関幅時間幅比と 3 次の場合の相関幅時間幅比を求める。時間 t における sech^2 パルス波形 $I(t)$ は次の式で表され、この関数は Fig.5.3.1 で示される。

$$I(t) = \text{sech}^2\left(\frac{1.76t}{t_p}\right) = \left[\frac{2}{\exp(1.76t/t_p) + \exp(-1.76t/t_p)} \right]^2 \quad (5.3.1)$$

ここで t_p は、パルス幅である。1.76 は、FWHM を 1 にするための係数である。2 次の自己相関関数 $G^2(t)$ は、式(3.2) で表される。正規化した形では、次の式になる。

$$G^2(t) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-t)dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t)dt} \quad (5.3.2)$$

パルス幅 t_p を 1 として、式(5.3.2)に式(5.3.1)を代入し実際に数値積分して計算した結果を Fig.5.3.1 で示す。同様に 3 次の自己相関関数 $G^3(t)$ についても

$$G^3(t) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t)I(t-t)dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t)I(t)dt} \quad (5.3.3)$$

となり、この計算結果も Fig.5.3.1 で示す。

以上の結果から、FWHM が 1 である sech^2 のパルス波形の 2 次、3 次の相関波形の FWHM は、それぞれ、1.54 倍と 1.29 倍となることがわかる。これらの値が 2 次、3 次の相関幅時間幅比となるので観測される相関波形の幅をこの値で割ることで実際のパルス幅を求めることができる。

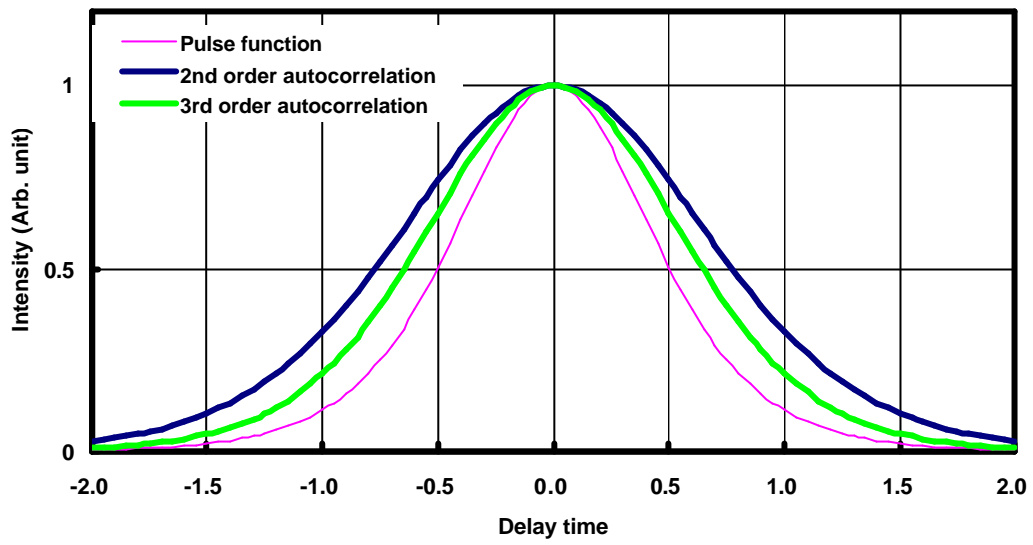


Fig.5.3.1 sech^2 のパルス波形とその 2 次、 および 3 次の相関波形

6. 業績リスト

6.1 発表論文

Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Zhenlin Liu, Nobuhiko Sarukura, Kiyoshi Shimamura, Tsuguo Fukuda, Masahiro Hirano and Hideo Hosono
Time-resolved gain-spectrum measurement scheme using two potential laser media and a streak camera
REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS, **72**, 2875-2878 (2001).

Toshimasa KOZEKI, Yuji SUZUKI, Masahiro SAKAI, Hideyuki OHTAKE, Nobuhiko SARUKURA, Zhenlin LIU, Kiyoshi SHIMAMURA, Kenji NAKANO and Tsuguo FUKUDA
Observation of new excitation channel of Cerium ion through highly vacuum ultraviolet transparent LiCAF host crystal
Journal of Crystal Growth, **229**, 501-504 (2001)

Toshimasa KOZEKI, Yuji SUZUKI, Masahiro SAKAI, Hideyuki OHTAKE, Nobuhiko SARUKURA, Kiyoshi SHIMAMURA, Tsuguo FUKUDA, Terunobu NAKAJYO, Fumio SAKAI, and Yasushi AOKI
Electron-beam excitation of Ce^{3+} :LiCaAlF₆ crystal for future high-peak power UV lasers
Appl. Phys. B 74 [Suppl.], S185–S187 (2002)

Zhenlin Liu, Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Nobuhiko Sarukura, Kiyoshi Shimamura, Tsuguo Fukuda, Masahiro Hirano, Hideo Hosono
Chirped-pulse amplification of ultraviolet femtosecond pulses by use of Ce^{3+} LiCaAlF₆ as a broadband, solid-state gain medium
Optics Letters, **26**, 301-303 (2001).

Z. Liu, T. Kozeki, Y. Suzuki, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano, and H. Hosono
 Ce^{3+} :LiCaAlF₆ crystal for high-gain or high-peak-power amplification of ultraviolet femtosecond pulses and new potential ultraviolet gain medium: Ce^{3+} :LiSr_{0.8}Ca_{0.2}AlF₆
IEEE J. of Selected Topics in Quantum Electronics, **7**, 542-550 (2001).

Zhenlin LIU, Toshimasa KOZEKI, Yuji SUZUKI, Nobuhiko SARUKURA, Kiyoshi SHIMAMURA, Tsuguo FUKUDA, Masahiro HIRANO and Hideo HOSONO
Ultraviolet Femtosecond Pulse Amplification with High Gain Using Solid-State, Broad-Band Gain Medium Ce^{3+} :LiCaAlF₆
Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 2308-2309 (2001).

Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, T. Fukuda, T. Kozeki, H. Ohtake, and N. Sarukura,
High-pulse-energy ultraviolet Ce:LiCAF laser oscillator with newly designed pumping schemes

Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L466-467 (2000).

Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, N. Mujilatu, T. Fukuda, T. Kozeki, H. Ohtake, and N. Sarukura,

Direct Generation of 27-mJ, 309-nm Pulses from a $\text{Ce}^{3+}:\text{LiLuF}_4$ Oscillator Using a Large-Size $\text{Ce}^{3+}:\text{LiLuF}_4$ Crystal

Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L88-L89 (2000).

H. Murakami, T. Kozeki, Y. Suzuki, et al

Nanocluster crystals of lacunary polyoxometalates as structure-design-flexible, inorganic nonlinear materials

Appl. Phys. Lett. 79 (22), 3564-3566 (2001).

Y. Suzuki, T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura, T. Nakajyo, F. Sakai, and Y. Aoki,
Hybrid time-resolved spectroscopic system for evaluating laser material using a table-top-sized, low-jitter, 3-MeV picosecond electron-beam source with a photo cathode,
Appl. Phys. Lett. **80**, 3280 (2002).

6.2 学会発表

1999 年

M. SAKAI, Z. LIU, T. KOZEKI, H. OHTAKE and N. SARUKURA

LiCAF crystal as a new vacuum ultraviolet optical material with transmission down to 112 nm
CLEO/Pacific Rim 1999 WL4

劉振林, 小関俊政, 大竹秀幸, 猿倉信彦, 島村清史, 中野憲司, 福田承生

Ce:LLF レーザーから 11 mJ 紫外パルスの発生

1999 年秋季第 60 回応用物理学会学術講演会 2pL14

2000 年

T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura, Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, N. Mujilatu, T. Fukuda

Novel design of high-pulse-energy ultraviolet Ce:LiCAF laser oscillator, Toshimasa

Advanced Solid-State Lasers 2000 Davos, February 13-16, 2000, WB1

Z. LIU, K. SHIMAMURA, K. NAKANO, N. MUJILATU, T. FUKUDA, T. KOZEKI, H. OHTAKE and N. SARUKURA

Direct generation of 27-mJ, 309-nm pulse from a Ce:LLF oscillator using a large-size Ce:LLF crystal

Advanced Solid-State Lasers 2000 Davos, February 13-16, 2000, WB2

T. KOZEKI, H. OHTAKE, N. SARUKURA, Z. LIU, K. SHIMAMURA, K. NAKANO, N. MUJILATU and T. FUKUDA,
High-pulse-energy ultraviolet Ce:LLF and Ce:LiCAF lasers using CZ-grown large-size crystals and new cavity configuration
CLEO/QELS 2000, CMD7

レーザー研究コンファレンスレポート CLEO/QELS 2000 報告
伊藤弘昌, 小林洋平, 小関俊政, 猿倉信彦, 小山二三夫, 和田智之, 平等拓範, 今井一宏, 南出泰亜, 松本正行, 佐藤尚, 熊谷寛, 向井剛輝, 吉田正裕
レーザー研究 Vol. 28, Number 8 August 2000

H. Murakami, Z. Liu, T. Kozeki, H. Ohtake and N. Sarukura

Novel double-pass, high-gain, Ti:sapphire cw-amplifier delivering 82-MHz repetition rate, 5.77-W average power, femtosecond pulses

2000 Conference on Lasers and Electro-optoelectronics Europe, Nice, September 10-15, 2000, paper CTuC7.

M. Sakai, T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura, Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, N. Mujiratu and T. Fukuda,

Observation of new excitation channel of Cerium ion through LiCAF host crystal

2000 Conference on Lasers and Electro-optoelectronics Europe, Nice, September 10-15, 2000, paper CWF27

Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, T. Fukuda, Y. Segawa, T. Kozeki, H. Ohtake N. Sarukura,

Tunable ultraviolet solid-state lasers using large Ce:fluoride crystals and new pumping scheme
Nonlinear Optics, Hawaii, August 7-10, 2000, paper WA4.

Z. Liu, H. Murakami, T. Kozeki, S. Ono, H. Ohtake, N. Sarukura,

High-average-power, high-repetition-rate, femtosecond Ti:sapphire lasers with intra-cavity and extra-cavity cw-amplification schemes

Nonlinear Optics, Hawaii, August 7-10, 2000, paper WD4.

Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, N. Mujilatu, T. Fukuda, T. Kozeki, H. Ohtake N. Sarukura,

High-pulse-energy ultraviolet Ce:LLF and Ce:LiCAF lasers using CZ-grown large-size crystals and new cavity configuration

Conference on Lasers and Electro-Optics, California, May 7-12, 2000, paper CMD7.

T. Kozeki, Y. Suzuki, M. Sakai, H. Ohtake, N. Sarukura, Z. Liu, K. Shimamura T. Fukuda,
Observation of new excitation channel of Cerium ion through LiCAF host crystal
International Photonics Conference, Taiwan, December 12-15, 2000, paper F-T3-D004.

H. Murakami, Z. Liu, T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura,
Novel double-pass, high-gain, Ti:sapphire cw-amplifier
The 7th International Workshop on Femtosecond Technology, Tsukuba, June 29-30, 2000,
paper TC-40.

Z. Liu, H. Murakami, T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura, The Twelfth International
Reflection-double-pass, Ti:sapphire continuous-wave amplifier delivering 5.77-W average
power, 82-MHz repetition rate, 100-fs pulses
Conference on Ultrafast Phenomena, Charleston, July 9-13,
2000, paper MF23.

Z. Liu, T. Kozeki, Y. Suzuki, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano H. Hosono,
Chirped pulse amplification for ultraviolet femtosecond pulses using Ce:LiCAF gain medium
The Twelfth International Conference on Ultrafast Phenomena, Charleston, July 9-13, 2000,
paper PDP2.

小関俊政, 大竹秀幸, 猿倉信彦, 劉振林, 島村清史, 中野憲司, Na MUJILATU, 福
田承生
Ce:LLF レーザーから 27 mJ 紫外パルスの発生
2000 年春季第 47 回応用物理学会学術講演会 31p-YE-5/III

劉振林, 平野正浩, 細野秀雄, 小関俊政, 猿倉信彦
High-pulse-energy ultraviolet Ce:fluoride lasers with different cavity configurations
2000 年秋季第 61 回応用物理学会学術講演会 6p-Q-5/III

村上英利, 劉振林, 小関俊政, 鈴木祐仁, 大竹秀幸, 猿倉信彦
CW レーザー励起増幅による高出力・超短パルスの発生
2000 年秋季第 61 回応用物理学会学術講演会 6p-M-4/III

Toshimasa KOZEKI, Hideyuki OHTAKE, Nobuhiko SARUKURA, Zhenlin LIU, Kiyoshi
SHIMAMURA, Kenji NAKANO, Na MUJILATU, and Tsuguo FUKUDA,
High-pulse-energy ultraviolet Ce:LLF and Ce:LiCAF lasers using CZ-grown large-size
crystals and new cavity configuration
The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)2000 CMD7

H. Murakami, Z. Liu, T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura,
Novel Double-Pass, High-Gain, Ti:Salpphire CW-Amplifier
The 1st Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, Sendai, August 29 -
September 1, 2000, paper T-P-64.

Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, T. Fukuda, T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura,
Noncollinear, Brewster-Pumped Ce:LiCAF Laser
The 1st Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, Sendai, August 29 -
September 1, 2000, paper T-P-94.

T. Kozeki, H. Ohtake, N. Sarukura, Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, T. Fukuda
Direct Generation of 27-mJ, 309-nm Pulses from a Ce:LLF Oscillator
The 1st Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, Sendai, August 29 -
September 1, 2000, paper T-P-99.

Toshimasa KOZEKI, Yuji SUZUKI, Masahiro SAKAI, Hideyuki OHTAKE, Nobuhiko
SARUKURA, Zhenlin LIU, Kiyoshi SHIMAMURA, Kenji NAKANO, Na Mujilatu, and
Tsuguo FUKUDA
Observation of New Excitation Channel of Cerium Ion through LiCAF Crystal
The 1st Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology *CGCT-1, 2000*
[F-C-08]

2001 年

Toshimasa KOZEKI, Zhenlin LIU, Yuji SUZUKI, Nobuhiko SARUKURA, Masahiro
HIRANO, Hideo HOSONO, Kiyoshi SHIMAMURA, Tsuguo FUKUDA
New ultraviolet, tunable, solid-state laser medium: $Ce^{3+}:LiSr_{0.8}Ca_{0.2}AlF_6$ for potential
applications to high-power laser amplifiers
Advanced Solid-State Lasers 2001 Poster Session 2, ME9

Zhenlin LIU, Toshimasa KOZEKI, Yuji SUZUKI, Nobuhiko SARUKURA, Kiyoshi
SHIMAMURA, Tsuguo FUKUDA, Masahiro HIRANO, and Hideo HOSONO
Chirped pulse amplification for ultraviolet femtosecond pulses using the broad-band $Ce^{3+}:LiCaAlF_6$ crystal
Advanced Solid-State Lasers 2001 WA7

Yuji Suzuki, Hidetoshi Murakami, Toshimasa Kozeki, Hideyuki Ohtake, Zhenlin Liu,
Nobuhiko Sarukura
High-gain, novel double-pass, Ti:sapphire cw-amplifier and its potential output-power
scalability over 10-W level by cascading,
Advanced Solid-State Lasers 2001 WB5

Z. Liu, T. Kozeki, Y. Suzuki, N. Sarukura, K. Shimamura, T. Fukuda, M. Hirano, and H.
Hosono,

Yuji Suzuki, Toshimasa KOZEKI, Nobuhiko SARUKURA, Terunobu Nakajyo, Fumio
Sakai, Yasushi Aoki,
Evaluation of laser material using a table-top-sized, low-jitter, 3-MeV picosecond

electron-beam source with a photo cathode

Conference on Lasers and Electro-Optics 2001, CThM1

鈴木祐仁, 小関俊政, 酒井雅弘, 大竹秀幸, 猿倉信彦, 島村清史, 福田承生
固体紫外レーザー結晶 Ce:LiCAF の新しい励起チャンネルの観測

2001 年春季第 48 回応用物理学会学術講演会 30p-P12-4/III

小関俊政, 劉振林, 鈴木祐仁, 猿倉信彦, 島村清史, 福田承生, 平野正浩, 細野秀雄

新紫外波長可変全固体レーザー媒質: $Ce^{3+}:LiSr_{0.8}Ca_{0.2}AlF_6$

2001 年春季第 48 回応用物理学会学術講演会 30p-P12-5/III

小関俊政, 劉振林, 鈴木祐二, 猿倉信彦, 島村清史, 福田承生, 平野正浩, 細野秀雄

2 結晶ポンプ・プローブ法による新レーザー媒質評価法の開発

2001 年春季第 48 回応用物理学会学術講演会 30p-P12-6/III

Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Masahiro Sakai, Hideyuki Ohtake, Nobuhiko Sarukura, Kiyoshi Shimamura and Tsuguo Fukuda "Observation of new excitation channels of Cerium ion through absorption by various fluoride host crystals" CLEO 2001

Toshimasa KOZEKI, Yuji SUZUKI, Nobuhiko SARUKURA, Kiyoshi SHIMAMURA, Tsuguo FUKUDA, Zhenlin LIU, Masahiro HIRANO and Hideo HOSONO

All-solid-state $Ce^{3+}:LiCaAlF_6$ amplifier for femtosecond ultraviolet pulses toward terawatt level

8th International Workshop on Femtosecond Technology FST 2001, June 28-29, 2001

AIST-Tsukuba Research Center Tsukuba, JAPAN, FA-8

Toshimasa KOZEKI, Yuji SUZUKI, Hideyuki OHTAKE, Nobuhiko SARUKURA, Terunobu NAKAJYO, Fumio SAKAI and Yasushi AOKI

Evaluation of laser media using a compact, low-jitter, 3-MeV picosecond electron-beam source with a photo cathode

The 8th International Workshop on Femtosecond Technology FST 2001, June 28-29, 2001

AIST-Tsukuba Research Center Tsukuba, JAPAN

Toshimasa Kozeki, Zhenlin Liu, Yuji Suzuki, Nobuhiko Sarukura Kiyoshi Shimamura Tsuguo Fukuda, Masahiro Hirano, and Hideo Hosono

New Ultraviolet, Tunable, Solid-State Laser Medium: $Ce^{3+}:LiSr_{0.8}Ca_{0.2}AlF_6$ for high-peak-power amplifier

The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO/Pacific Rim 2001

Zhenlin Liu, Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Nobuhiko Sarukura, Masahiro Hirano, Hideo Hosono Kiyoshi Shimamura, and Tsuguo Fukuda
All-solid-state $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ amplifier for femtosecond ultraviolet pulses toward terawatt level

The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO/Pacific Rim 2001

Zhenlin Liu, Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Nobuhiko Sarukura, Masahiro Hirano, and Hideo Hosono

Long-term stable, high-pulse-energy fourth harmonic generation of Nd:YAG laser with large $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ crystals

The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO/Pacific Rim 2001

Toshimasa Kozeki, Zhenlin Liu, Yuji Suzuki, Nobuhiko Sarukura Kiyoshi Shimamura Tsuguo Fukuda, Masahiro Hirano, and Hideo Hosono

Time-resolved gain-spectrum measurement scheme using two-potential laser media

The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO/Pacific Rim 2001

Toshimasa Kozeki, Zhenlin Liu, Nobuhiko Sarukura, Masahiro Hirano and Hideo Hosono

Vacuum ultraviolet, 157 nm video-rate imaging with a reflective optics and a back-thinned CCD camera

The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO/Pacific Rim 2001

小関俊政, 劉振林, 鈴木祐仁, 小野晋吾, 猿倉信彦, 平野正浩, 細野秀雄
反射光学系と背面照射型 CCD を用いた真空紫外領域におけるリアルタイム撮影
第 62 回 2001 年秋季応用物理学会学術講演会 12p-ZQ-13/III

劉振林, 小関俊政, 小野晋吾, 猿倉信彦, 平野正浩, 細野秀雄

Generation of intense 25-fs pulses at 290 nm by use of a hollow fiber filled with argon gas for the TW $\text{Ce}:\text{LiCAF}$ laser system

第 62 回 2001 年秋季応用物理学会学術講演会

2002 年

Hidetoshi Murakami, Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Shingo Ono, Hideyuki Ohtake, Nobuhiko Sarukura,

Nanocluster molecular crystals of lacunary polyoxometalates as structure-design-flexible, new inorganic nonlinear materials,

Advanced Solid-State Lasers (ASSL) 2002, MB8.

Yuji Suzuki, Shingo Ono, Hidetoshi Murakami, Toshimasa Kozeki, Hideyuki Ohtake, Nobuhiko Sarukura, Genta Masada, Hiroyuki Shiraishi, Ichiro Sekine,
0.336-J, 10-Hz fourth harmonic generation of Nd:YAG laser using large $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ crystals,
Advanced Solid-State Lasers (ASSL) 2002, WC4.

Hidetoshi Murakami, Shingo Ono, Yuji Suzuki, Toshimasa Kozeki, Hideyuki Ohtake, Nobuhiko Sarukura, Hiroki Sato, Susumu Machida, Tokin Corp.; Kiyoshi Shimamura, Tsuguo Fukuda, Large-aperture $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ power-amplifier module development for the TW ultraviolet femtosecond CPA laser system, Advanced Solid-State Lasers (ASSL) 2002, WC5.

レンズ材料として LiCaAlF_6 結晶を用いた屈折光学系による真空紫外カメラの作成

小関俊政, 村上英利, 大竹秀幸, 猿倉信彦, 清原元輔, 清原頼業, 島村清史, 福田承生
第 49 回 2002 年春季応用物理学会学術講演会, 29a-ZG-7

Zhenlin Liu, Toshimasa Kozeki, Shingo Ono, Nobuhiko Sarukura, Masahiro Hirano and Hideo Hosono,

Generation of intense 25-fs, 290-nm seed pulses
for the terawatt-class ultraviolet solid-state laser system
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2002,

Yuji SUZUKI, Shingo ONO, Hidetoshi MURAKAMI, Toshimasa KOZEKI, Hideyuki OHTAKE, Nobuhiko SARUKURA, Genta MASADA, Hiroyuki SHIRAISHI, Ichiro SEKINE

Generation of 0.336-J, 10-Hz, 266-nm pulses from Nd:YAG laser using large $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ nonlinear crystals

Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2002,

Shingo ONO, Yuji SUZUKI, Toshimasa KOZEKI, Hidetoshi MURAKAMI, Hideyuki OHTAKE, and Nobuhiko SARUKURA Hiroki SATO, and Susumu MACHIDA, Kiyoshi SHIMAMURA, and Tsuguo FUKUDA

Large-aperture $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ power-amplifier module for the terawatt-class ultraviolet solid-state laser system

Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2002,

Yuji SUZUKI, Hideyuki OHTAKE, Shingo ONO, Toshimasa KOZEKI, Masahiro SAKAI, Hidetoshi MURAKAMI, and Nobuhiko SARUKURA

Anomalous magnetic-field dependence of THz-radiation power from femtosecond-laser irradiated InSb and InP

Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2002,

7. 謝辞

本研究は、岡崎国立共同研究機構分子科学研究所分子制御レーザー開発センター猿倉研究室に所属していた期間に行われたものです。

本研究の遂行にあたりまして、猿倉信彦助教授と大竹秀幸助手には、研究テーマの選定から、実験、理論の両面にわたってご指導、ご鞭撻を頂き深く感謝しております。この間、多くの貴重な経験を得ることができました。ここに、心より深く感謝いたします。猿倉助教授は、固体波長可変紫外レーザーの第一人者として、本研究について細かくご指導いただきました。また、大竹助手には実験技術の面では大変お世話になりました。

結晶育成に関して、東北大学金属材料研究所の福田承生教授、島村清史助手ならびに株式会社トーキンの町田博氏、佐藤浩樹氏には、大変お世話になりました。

科学技術振興事業団 細野透明電子活性プロジェクトの細野秀雄教授、平野正浩氏には、研究方針のご指導など多岐にわたって大変お世話になりました。特に猿倉研究室の先輩でもある細野透明電子活性プロジェクト研究員、劉振林氏にはレーザーの扱い方など、多くの指導して頂きましたことを大変感謝しております。

極端紫外光実験施設 (UVSOR) の蓮本正美技官には、測定の指導して頂き感謝しております。分子科学研究所物質開発センターの酒井雅弘技官には、極端紫外光実験施設における実験について御指導頂きました。

理化学研究所工学基盤研究部 和田智之研究員には、論文を御指導頂き大変感謝しております。

また、秘書の鈴木さとみさん、機械工作室の方々、大学の事務の方々にも感謝申し上げます。

最後になりましたが、猿倉研究室の村上英利氏、鈴木祐仁君、小野晋吾君、には、共に研究を進める上であらゆる面で協力をして頂き、ここに深く感謝いたします。