

氏 名 小 関 俊 政

学位（専攻分野） 博士(工学)

学 位 記 番 号 総研大甲第641号

学位授与の日付 平成14年9月30日

学位授与の要件 先導科学研究科 光科学専攻

学位規則第4条第1項該当

学 位 論 文 題 目 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

論 文 審 査 委 員 主 査 助 教 授 中 島 一 久
教 授 安 藤 正 海
助 教 授 猿 倉 信 彦
客 員 教 授 福 田 承 生 (東 北 大 学)

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.

論文審査結果の要旨

最初のレーザー出現以来、レーザー媒質と発振技術開発の著しい進歩により高出力化と発振波長領域の拡大が図られ、レーザーは基礎科学、産業分野における重要なツールとして確立しつつある。とくに近年、小型高出力超短パルス光源を可能とする波長可変固体レーザー開発への要求が科学技術の様々な分野で高まっている。本論文は、従来主として赤外領域に限られていた高出力レーザー発振を紫外領域でも可能とするレーザー増幅媒質の広い利得特性を測定評価する画期的な手法を考案し、その情報をもとに実現した高出力紫外超短パルスレーザーの開発に関する研究を述べたものである。

光リソグラフィ技術をはじめとして超高速分光やリモートセンシングなど紫外領域の高い空間分解能や超短パルス性、波長可変性を活用する光学応用分野においては小型で安定動作する高出力紫外レーザーが強く求められているが、これを可能とする高い紫外光に対する特性を有し、広い利得スペクトル幅を持つ固体レーザー媒質の開発は急務である。このため本研究では最近育成が可能になった大口径の Ce イオン添加高品質フッ化物結晶に着目し、今まで適切な波長可変紫外光源がないなどの理由で、詳細なデータがなかったそれらフッ化物結晶についてレーザー媒質としての特性評価をまず研究課題にとりあげた。

現在一般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、既存のレーザー光源を用いるため未知の特性を持つ新レーザー媒質について広範囲のスペクトル領域にわたって利得を測定し、詳細な評価を行うのは困難である。このため著者は、この弱点を克服する簡易で確実な新特性評価法を開発し、実際に Ce イオン添加フッ化物結晶のレーザー媒質特性評価に応用し、信頼性の高いデータを得ることに成功した。新評価法は、2つの評価対象レーザー媒質と分光ストリーク技術を用い、一方のレーザー媒質からの蛍光を時間遅延しプローブ光として他方の媒質の特性評価に使う方法で、特殊なプローブ光源を用いず、周波数-時間軸における広範囲の利得分布を原理的には1ショットで測定できる。したがって未知の発光スペクトルを持ち強い励起光による特性変化が起こるような新レーザー媒質の利得評価も可能とし、新物質の開発に威力を発揮することが期待できる。論文では、従来のポンプ・プローブ法による1周波数での時間軸のみの離散的な利得測定評価と比較し、新評価法が利得係数の周波数-時間軸での2次元マッピングを瞬時に行い、精度の高い詳細な利得情報を得ることができることを実証し、数値シミュレーションによって新評価法が正しい利得分布を与えることを確かめた。

著者は、この新利得評価法を用いてフッ化物紫外レーザー媒質の利得分布の測定を実施し、従来レーザー媒質として知られている Ce:LiCAF, Ce:LiSAF 結晶に加え、新たに Ce:LiSCAF 結晶が増幅媒質として有望であることを偏光特性などの詳しい利得評価の結果明らかにした。さらにこの利得評価にもとづき開発段階の新フッ化物結晶のレーザー発振実験を試み、発振に成功したが、励起強度が高い場合、不純物が原因と思われる結晶の劣化が起こることが判明した。また一連の研究では、これら紫外フッ化物結晶の深紫外領域での励起利得特性についてもシンクロトロン放射光源を用いた分光測定を行い、非常に短い透過端波長を持つことを見出すとともに、透過端波長における新しい励起チャンネルを発見する意外な展開を見た。この結果、紫外フッ化物結晶が真空紫外領域において光学材料として有用であるばかりでなく、新しい励起法による固体紫外レーザー高利得化の可

能性を示唆する重要な発見を行った。

これらの実験結果から著者らの研究グループでは、広帯域固体利得媒質として大口径高品質結晶の育成が可能になった Ce:LiCAF を特定し、世界でも最初の試みとなる高出力超短パルス紫外レーザー開発に着手した。超短パルス増幅の手法は、近赤外レーザーでは確立した技術となっているチャープパルス増幅法であるが、超短パルスオシレーターや励起光源などの問題を解決し、パルス幅 120 フェムト秒、ピーク出力 30GW という紫外固体レーザーでは世界最高レベルの高出力超短パルスレーザーシステムの開発に成功した。著者は、この研究においても一般に行われている方法とは異なる 3 次の自己相関法を用いた紫外フェムト秒パルス幅計測や共焦点 4 光路フェムト秒パルス増幅器を構築し、Ce:LiCAF 結晶の高利得特性を実証するなど重要な役割を果たした。

本論文は、新レーザー媒質の利得特性を評価する独創的な手法を開発し、フッ化物レーザー媒質の詳細な利得測定を行い、この情報をもとに高出力超短パルス紫外固体レーザー開発に到った研究が詳しく述べられている。本研究成果は、高利得新レーザー媒質の開発には直接的に貢献するとともに、紫外領域の超高出力レーザー実現への展望を開き、科学技術の新しい応用分野を開拓し、その発展に貢献することが期待できる。したがって本論文は、博士学位論文として十分に相応しい内容である。