

氏 名 劉 振 林

学位（専攻分野） 博士(学術)

学位記番号 総研大甲第424号

学位授与の日付 平成11年9月30日

学位授与の要件 数物科学研究科 構造分子科学専攻

学位規則第4条第1項該当

学位論文題目 **Ce<sup>3+</sup> Ion Activated Fluoride Crystals as Prospective  
Active Media for High-Power All-Solid-State Ultraviolet Tunable  
Ultrafast Lasers**

論文審査委員 主 査 教 授 宇理須 恆雄  
教 授 西 信之  
助 教 授 鎌田 雅夫  
助 教 授 猿倉 信彦  
助 教 授 森田 紀夫  
教 授 福田 承生（東北大学）

Ultrashort-pulse generation in the ultraviolet (UV) region has been receiving a great deal of interest for high-intensity-field physics and different spectroscopic applications. All known tunable UV short-pulse laser sources are mode-locked Ti:sapphire lasers or various dye-laser based systems with amplification and subsequent wavelength-conversion stages. The above systems are extremely complicated and bulky devices with limited tunability, but there were no alternative tunable laser sources. In fact, direct UV short-pulse generation was reported only for excimer lasers. On the other hand, solid-state tunable UV-laser materials such as  $\text{Ce}^{3+}$  ion activated  $\text{LuLiF}_4$  (LLF),  $\text{LiCaAlF}_6$  (LiCAF), and  $\text{LiSrAlF}_6$  (LiSAF) have recently been developed. With their broad gain-width, they are attractive for direct ultrashort pulse generation and amplification in the ultraviolet region. Tunable lasers with tunability centered around 290 nm are of special interest for applications relating to the remote sensing. The simple, compact, all-solid-state Ce:LiCAF (282-314 nm) laser can generate coherent radiation in this wavelength region. Ce:LLF has a potential longer-wavelength tuning region of around 305 to 340 nm, so it is especially attractive for use in spectroscopy of wide band-gap semiconductors for blue laser diodes, such as GaN. Their broad gain bandwidth corresponding to a few femtoseconds is extremely attractive for short-pulse applications.

The new solid-state, tunable, ultraviolet crystals, Ce:LLF and Ce:LiCAF are proven to be very efficient and reliable to realize UV lasers. Subnanosecond ultraviolet coherent pulses were generated directly from solid-state lasers simply for the first time using low-Q, short-cavity Ce:fluoride lasers pumped by the fifth [1] and fourth [2] harmonics of Nd:YAG lasers.

To prove the tunability of these new laser materials, they made a tunable all-solid-state Ce:LLF laser with the fifth harmonic of an Nd:YAG laser as the pumping source [1]. They also demonstrated a tunable Ce:LiCAF laser with broad tuning region from 282 nm to 314 nm [2]. Furthermore, they obtained tunable UV pulses around 230 nm by the sum-frequency mixing of Ce:LiCAF and Nd:YAG lasers [3].

They have demonstrated the direct generation and efficient amplification of UV short pulses from the simplest, all-solid-state, UV short-pulse MOPA system composed of Ce:LiCAF crystals and conventional Q-switched Nd:YAG lasers [4]. In this way, they have proven that the Ce:LiCAF-based MOPA system is as effective and practical as other UV short-pulse systems.

Large Ce:LiCAF crystals with 15 mm diameter were successfully grown by the Czochralski method in collaboration with Tohoku University recently [5]. Due to the available large Ce:LiCAF crystal, they obtained 60-mJ output energy from the Ce:LiCAF laser, the highest output directly from a Ce:LiCAF laser reported until now. A much higher output can be expected by fully utilizing the crystal cross size while using a larger pumping

source. This suggests that Ce:LiCAF is a promising material for high-energy ultraviolet pulse generation combined with a high-power, Q-switched Nd:YAG laser [6].

With the development of the new laser media and nonlinear crystals, solid-state tunable ultraviolet short-pulse lasers have been realized [7]. It is reasonable to expect the cw solid-state ultraviolet Ce:fluoride lasers in future with the improvement of Ce:fluoride crystal qualities and high power ultraviolet cw pumping sources.

In conclusion, they believe, with the improvement of the quality and size of UV laser crystals and nonlinear crystals (which are important for the cw UV pumping sources), all-solid-state, compact, ultrashort pulse, ultraviolet, tunable Ce:fluoride lasers will be possible in the near future. Further development of laser systems using these new laser media will open up new possibility of simple and compact tunable UV ultrashort-pulse laser light sources.

- [1] N. Sarukura, Z. Liu, S. Izumida, M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, and S. L. Korableva, "All-solid-state tunable ultraviolet sub-nanosecond laser with direct pumping by the fifth harmonic of an Nd:YAG laser," *Appl. Opt.* 37, 6446-6448 (1998).
- [2] Z. Liu, H. Ohtake, N. Sarukura, M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, S. L. Korableva, A. K. Naumov, and V. V. Semashko, "Subnanosecond tunable ultraviolet pulse generation from a low-Q, short-cavity Ce:LiCAF laser", *Jpn. J. Appl. Phys.* 36, L1384-L1386 (1997).
- [3] Z. Liu, N. Sarukura, M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, S. L. Korableva, A. K. Naumov, and V. V. Semashko, "Tunable ultraviolet short-pulse generation from a Ce:LiCAF laser amplifier system and its sum-frequency mixing with an Nd:YAG laser", *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, L36-L38 (1998).
- [4] N. Sarukura, Z. Liu, H. Ohtake, Y. Segawa, M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, S. L. Korableva, A. K. Naumov, and V. V. Semashko, "Ultraviolet short pulses from an all-solid-state Ce:LiCAF master oscillator and power amplifier system", *Opt. Lett.* 22, 994-996 (1997).
- [5] K. Shimamura, N. Mujilatu, K. Nakano, S. L. Baldochi, Z. Liu, H. Ohtake, N. Sarukura, and T. Fukuda, "Growth and characterization of Ce-doped LiCaAlF<sub>6</sub> single crystals", *J. Crystal Growth* 197, 896-900 (1999).
- [6] Z. Liu, S. Izumida, H. Ohtake, N. Sarukura, K. Shimamura, N. Mujilatu, S. L. Baldochi, and T. Fukuda, "High-pulse-energy, all-solid-state, ultraviolet laser oscillator using large Czochralski-grown Ce:LiCAF crystal," *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, L1318-L1319 (1998).
- [7] Z. Liu, N. Sarukura, M. A. Dubinskii, R. Y. Abdulsabirov, and S. L. Korableva, "All-solid-state subnanosecond tunable ultraviolet laser sources based on Ce<sup>3+</sup>-activated fluoride crystals", *J. of Nonlinear Optical Physics and Materials* 8, 41-54 (1999).

## 論文の審査結果の要旨

劉振林君の学位論文は、新しい紫外領域の固体レーザー媒質である  $Ce^{3+}$  イオンをドープしたフッ化物結晶が全固体紫外レーザーシステムの構築やこれによる波長可変短パルスの直接発生とその大出力に有望な材料であることについて実証したものである。

現在、紫外波長領域の極端パルスレーザーは、すべて Ti サファイアレーザーあるいは色素レーザーの極短パルスを波長変換することにより得ている。紫外波長領域の高出力の短パルス光の直接発振は、現在エキシマレーザーによってのみ実現されている。一方、最近、紫外波長領域の固体レーザー材料として、 $Ce^{3+}$  イオンで活性化されたフッ化物結晶が開発され、紫外波長領域の新レーザー媒質として注目されてきている。劉振林君はこの材料を用いた各種レーザー系を製作し、出力、パルス特性などのトップデータを出すことに成功した。

論文は全体で 6 章で構成されている。

第 1 章序論では、紫外波長可変レーザーのこれまでの発展と新しい紫外固体レーザー媒質 ( $Ce:LLF$  と  $Ce:LiCAF$  結晶) の基本特性が紹介されている。また、申請者が以前に行った  $Ce$  結晶に関する基礎研究の結果が述べられている。

第 2 章では、申請者が提案したレーザー装置と新励起光源の開発によって、全固体  $Ce:LLF$  と  $Ce:LiCAF$  レーザーからのサブナノ秒パルスの発生が初めて実現されたことが述べられている。

第 3 章では、 $Ce:LLF$  と  $Ce:LiCAF$  レーザーの共振器構成を工夫することにより、波長可変の紫外短パルスの直接発生を実現した。そして波長可変の  $Ce:LiCAF$  レーザー増幅システムと  $Nd:YAG$  レーザーの和周波発生により 230nm 付近での波長可変紫外光の発生に成功したことを記している。

第 4 章では、 $Ce:LiCAF$  結晶により発振・増幅システムが構築され、 $Ce:LiCAF$  結晶が紫外増幅媒質として有効であることを実証している。

第 5 章で、東北大学の福田教授らとの共同研究により、 $Ce:LiCAF$  レーザーの大出力化に際して懸案となっていた大きな高品位結晶を実現し、60mJ の高出力レーザーパルスの発生に成功したことを述べている。これにより、 $Ce:LiCAF$  レーザーは紫外の当該波長領域において他のいかなる方法よりも簡便かつ実用的光源であることが実証された。

第 6 章で、以上の研究を総まとめすると共に、今後の展望を示している。

このように、本研究は  $Ce:LLF$  と  $Ce:LiCAF$  レーザーの新しい可能性を様々な形で追求しており、これらの新材料が将来の全固体紫外波長可変極短パルスレーザーの媒質として有望であることを証明し、新しい紫外固体レーザー材料について、重要なレーザー特性を適切に評価することに成功している。これらの観点から、本論文は独創性、基礎学力、実験能力いずれの点からも高く評価できるものである。また、筆頭著者として 4 件の論文を著している以外に多数の論文を査読のある国際誌に発表していること、国際会議において多くの発表を行っていることなどから、国際的に研究活動のできる研究能力及び英語力があると認められる。

よって、審査委員全員一致して合格と判断した。

劉振林氏の博士論文に関し、研究の独創性、専門分野ならびに基礎となる関連分野の学識を口述により試験した。紫外固体レーザーの新材料として注目され始めている  $\text{Ce}^{3+}$ ドープのフッ化物結晶に着目し、これを用いた各種のレーザー系を製作し、出力、短パルス特性などでトップデータを出すことに成功し、この材料の有用性を時機を得て証明した。レーザー分野の学術研究として高い水準の研究内容である。レーザー技術などの基礎知識に関する質問にも的確に答えられた。国際的学術雑誌に英文論文を多数発表しており、語学力はきわめて高いと判断される。

総じて学術博士の学位を授与するに値するものと全員一致で判定した。