

氏 名 Pham Hong Minh

学位（専攻分野） 博士（学術）

学位記番号 総研大甲第 1187 号

学位授与の日付 平成 20 年 9 月 30 日

学位授与の要件 物理科学研究科 機能分子科学専攻  
学位規則第 6 条第 1 項該当

学位論文題目 Ultraviolet Laser Emission from a Micro-Pulling Down  
Method Grown  $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$

論文審査委員	主 査 教授	加藤 政博
	准教授	繁政 英治
	准教授	中村 敏和
	准教授	菱川 明栄
	教授	猿倉 信彦(大阪大学)
	教授	谷 正彦(福井大学)

## 論文内容の要旨

Recently, various new fluoride crystals have been developed as host for solid-state tunable UV lasers. Cerium (Ce) doped laser materials have been developed for use in the direct and efficient generation of tunable ultraviolet (UV) laser using a UV pump source. These have emerged as convenient and compact laser sources based on the electronically dipole-allowed interconfigurational 5d-4f transitions of  $\text{Ce}^{3+}$  ions in wide band-gap fluoride crystals. They are especially attractive for ultrashort-pulse generation and amplifications in the UV region. Among these crystal,  $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$  (Ce:LiCAF) which was first reported by M.A. Dubinskii et al in 1993, is the first known tunable UV laser directly pumped by the fourth harmonic of standard Nd:YAG laser. It proved to have sustained high output due to the absence of solarization effects therefore leading to efficient and sustained high power laser emission. This crystal is typically grown by the Bridgman and Czochralski (CZ) methods. Part of the difficulty in developing new materials is the high cost and difficulty in producing large crystals by standard crystal growth methods. To economically and efficiently grown a large crystal with laser quality, the micro-pulling down ( $\mu$ -PD) method modified for fluoride crystal growth is advantageous. Owing to a fast growth speed, a high quality crystal can be grown at a shorter time and at a lower cost compared with other melt growth schemes. Moreover,  $\mu$ -PD method has the capability to control the shape of the grown crystal to produce fiber; rod; tube, and so on. In this thesis, successful growth of a laser-quality Ce:LiCAF crystal using the micro-pulling down method is described. To improve the Ce:LiCAF laser quality we also described the numerical simulation for optical properties of Ce:LiCAF. This is the first Ce:LiCAF crystal to be grown by the  $\mu$ -PD method, thus its basic optical properties have to be investigated. Primarily, given specified experimental parameters, the goal was to determine the important optical parameters of the Ce:LiCAF sample in order to design the appropriate experimental conditions. The properties that were investigated using numerical methods were radius, absorption coefficient, and absorption profile for specified given values of optical pump beam diameter, pump energy and an assumed refractive index for Ce:LiCAF. One way of possibly increasing the laser

output power for the Ce:LiCAF laser oscillator is to design a multiple side pumping scheme. In the experiment, the prismatic cell was applied for the first time in this work to a solid state laser system. It can offer an improved laser output beam quality due to more uniform electric field distribution in the crystal. It could also reduce the risk of damage in the crystal. Moreover multi-pass pumping will yield high power. This pumping geometry is similar in principle to a prismatic cell that was previously used in dye laser and was applied for the first time in this work to a solid-state laser system. This will be especially important in designing a high energy optically pump Ce:LiCAF laser. The quality of the Ce:LiCAF crystal as a laser material was then experimentally evaluated. A slope efficiency of 10% for the one, two-side, and multiple side pumping configurations were achieved. The experiment also showed that the slope efficiency improved from 10% to 23% when the sample's output windows were cut at Brewster angle. It should be noted that the samples that were studied in this work did not have polished sides, thus, explaining the relatively low slope efficiency values. Maximum output pulse energy of 1 mJ at 290 nm is achieved with an absorbed pump energy of 6 mJ with a slope efficiency of 23%. The lasing threshold is 2.5 mJ, which corresponds to a threshold fluence of  $10 \text{ mJ/cm}^2$ . The emission at 290 nm has a pulse width of approximately 4 ns. This is the first demonstration of lasing in the ultraviolet region from a  $\mu$ -PD method grown fluoride crystal. The flexibility and lower cost of this crystal growth scheme will drastically reduce the cost of crystal growth. This improvement will strongly enhance the applications of Ce:LiCAF laser itself.

## 論文の審査結果の要旨

Micro-Pulling Down 法（以下・・PD 法）は光材料の固相成長法の一手法であるが、安価で高い柔軟性を持つことから、将来的にレーザー用結晶の製作コストを大幅に削減できると考えられている。Pham 君は、紫外線レーザー用結晶として有望と考えられている  $\text{Ce}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$  (Ce:LiCAF) 結晶に着目し、これを・・PD 法により作製した。また、これを用いてレーザー発振を試み、この手法で作製された結晶では初めてとなるレーザー発振に成功した。

本論文の第 1 章では、研究の動機として、紫外レーザーの有用性、固体波長可変紫外レーザー開発の重要性、さらに・・PD 法の特長を説明している。第 2 章では研究の背景として、セリウム添加フッ化物結晶、また、結晶成長法に関するこれまでの研究について述べている。第 3 章では、レーザー結晶中での励起光の吸収に関する数値シミュレーションの手法を説明し、また、結晶成長装置とレーザー発振実験について詳細に述べている。第 4 章では、得られた結果について述べ、それに関して考察を行っている。第 5 章では、研究成果の結論と将来への展望を述べている。

本研究では、実験に先立ち、結晶中での励起光の吸収に関する数値シミュレーションを行い、円柱形状のレーザー結晶の最適な半径として 0.5mm という結果を得ている。また、結晶中でのエネルギー吸収の分布を求め、円柱の一方向から励起光を照射する場合に比べ、向かい合う二方向から同時に励起光を照射する手法によりエネルギー吸収の一様性が高まり、結晶の光損傷リスクを低減できることを見出している。また、出力光特性の改善にもつながるとしている。

次に・・PD 法を用いて結晶の成長を行ったが、結晶成長装置の制約から、結晶の半径は 0.1mm と、先に求めた最適値に比べ小さいものとなった。この円筒結晶を媒質とし Nd:YAG レーザーの 4 倍波（波長 266 nm）を励起光源とするレーザー発振器を設計・製作し、一方向、二方向、四方向の三通りの励起光照射によりレーザー発振（波長 290 nm）を試み、それぞれ成功した。

まず、一方向励起ではスロープ効率（吸収した励起光のエネルギーに対する出力レーザー光のエネルギーの比）として約 10%、また出力としては最大約 0.5mJ の値を得た。二方向励起でもほぼ同じスロープ効率を得た。光損傷リスクをさらに低減することを狙い、プリズム型ミラー配置による四方向からの励起光照射を試みたところ、スロープ効率は約 9%とやや低下した。これはミラーでの損失によるものであると解釈している。次にスロープ効率を改善するために、出力面をブリュースタ面でカットしたところ効率は 10%から 23%まで向上した。今後結晶の半径をより大きくし最適値に近づけることで効率はさらに改善すると予想している。

以上の結果は、他の手法により製作された Ce:LiCAF 結晶を用いた結果と比べて遜色のないものであり、・・PD 成長法が紫外レーザー用フッ化物材料の作製手法として有望であることが実証されたとしている。また、将来への展望として、Ce:LiCAF 結晶の増幅波長が 290 nm であることから、Ti:Sapphire レーザーの 3 倍波の増幅に有用であり、Ce:LiCAF 結晶を用いたフェムト秒増幅器実現の可能性があると述べている。

本論文の成果は、既に Pham 君を筆頭著者として国際誌に掲載されている。また、この成果はレーザー結晶製造の低コスト化に結びつくものであり、産業分野へのインパクトも大きい。よって本申請論文は博士（学術）の学位論文として十分に価値のあるものであると認められる。