

令和元年度学内公募研究（萌芽型）
〔研究論文〕

半導体レーザー励起アレキサンドライトレーザーの開発

佐藤 篤¹⁾

Development of a diode-pumped alexandrite laser

Atsushi SATO¹⁾

Abstract

An alexandrite laser operating in the 700-nm wavelength region is useful for medical and lidar applications. Recent progress in the pump laser-diode technology at 600-700 nm allowed us to develop diode-pumped alexandrite lasers as a practical laser source. In this study, the diode-pumping technique of alexandrite lasers was experimentally investigated. Spectroscopic measurements in the pump and laser wavelength regions were performed with an end-pumped alexandrite laser under 637-nm and 680-nm pumping conditions. The results show that the laser gain around 750 nm is enhanced at higher temperatures.

1 はじめに

波長700nm付近の可視波長領域で発振するアレキサンドライトレーザーは、ヘモグロビンやメラニンによる吸収が少なく血管や皮膚の損傷を抑えながら皮下組織の治療が行えることから医療分野で利用されている¹⁾。さらに、この波長帯は、波長770nmのカリウムの共鳴散乱線を利用した共鳴散乱ライダーなどライダー計測分野においても利用価値が高い²⁻³⁾。また、アレキサンドライトレーザーの発振波長は、研究用途及び産業用途において最も広く利用されているNd:YAGレーザーの基本波（波長1064nm）と第2高調波（波長532nm）のちょうど中間に位置するため⁴⁾、既存光源の波長ギャップを埋める固体レーザー技術としての期待も大きい。しかしながら、従来のアレキサンドライトレーザーはランプ励起方式に限られていたため、高効率かつメンテナンスフリーの半導体レーザー（LD）励起方式のレーザー光源の開発が待ち望まれていた。近年、アレキサンドライトレーザーの励起用途として利用可能な波長600nm帯LDの高出力化・高効率化が実用レベルで進んできたことから⁵⁾、筆者の研究グループでは、LD励起型アレキサンドライトレーザーの開発に着手した。本稿では、レーザー開発の中で得られた成果のうち、励起条

1) 東北工業大学 工学部 情報通信工学科 教授

Professor, Department of Information and Communication Engineering, Faculty of Engineering, Tohoku Institute of Technology.

件に関する実験結果とそれに基づくレーザー設計の検討結果について報告する。

2 エネルギー遷移過程

図1にアレキサンドライトレーザーのエネルギー遷移過程を示す。アレキサンドライトでは、基底準位である 4A_2 準位から 4T_2 準位あるいは 2E 準位への吸収を利用した励起が可能である。波長に換算すると緑色から赤色の波長帯となるが、赤色波長帯はレーザー発振の波長に近いので効率的である。励起用LDとしては、波長630～680nm付近での発振が可能なAlGaInPやGaAs, AlGaAs系LDが利用可能であり、本研究では、ワット級の高出力LDが入手できた波長637nm及び680nmを励起波長として選択した。吸収バンドとなる 4T_2 準位は寿命が $6.6\mu\text{s}$ と短い、その直下の 2E 準位の寿命が 1.54ms と長く、これらの2準位間が 800cm^{-1} 程度しか離れていないため、 4T_2 準位には寿命が長い 2E 準位からCrイオンが熱的に補充され続ける。結果として、アレキサンドライトレーザーの実効的なレーザー上準位寿命は $260\mu\text{s}$ 程度になることが知られている⁶⁾。レーザー遷移は、 2E - 4A_2 準位間の場合は3準位系、 4T_2 準位から振動準位へと終端する場合は4準位系あるいは準4準位系となる。後者は、レーザー下準位のCrイオン密度をゼロと近似できることから発振しきい値も低く、また広い波長可変性をもたらす。そこで本研究では、後者のレーザー遷移における中心波長として知られる波長750nm付近での発振を目指すこととした。前述の通り、 4T_2 準位のCrイオン密度は、ボルツマン分布の影響を受けることになるが、これはレーザー発振における反転分布密度が温度に依存することを意味している。従って、レーザー開発においては、レーザー利得の温度依存性にも注目する必要がある。

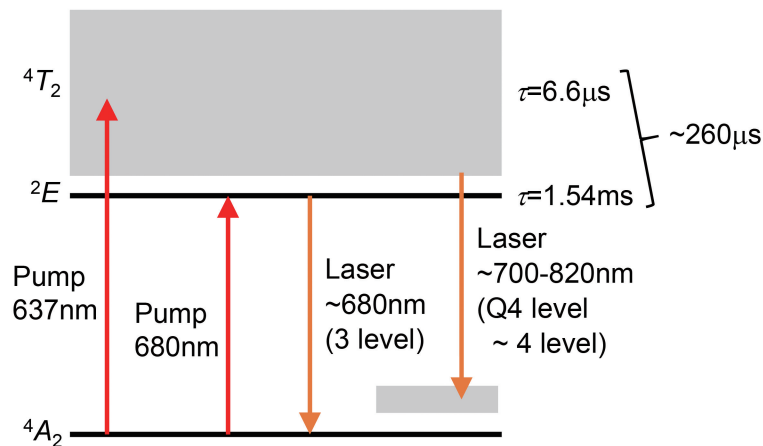


図1 エネルギー遷移過程。

3 レーザーの設計及び試作

3.1 レーザー結晶

図2に使用したアレキサンドライト結晶を示す。Cr ドープ率は0.4at.%であり，結晶サイズは2.5mm(a)×5.3mm(b)×5mm(c)となっている。励起光及びレーザー光の偏光は，吸収断面積及び誘導放出断面積が大きいb軸と平行にすることとした。結晶両端面は波長600-800nmに対し無反射（AR）コーティングされている。この結晶を試作した銅製ヒートシンクにマウントした。ヒートシンクと結晶の接触面には，熱伝達率を高めるため，厚さ50 μ mのインジウムシートを挿入した。ヒートシンク底面は，ペルチェ素子上に固定されており，15～95 $^{\circ}$ Cの範囲で温度調整が可能である。結晶温度は，ヒートシンク側面に開けられた直径2.2mmの穴から直径2mmの測温部をもつ白金温度センサー（Pt100 Ω ）を挿入しモニターした。結晶をマウントしたヒートシンクの外観を図3に示す。

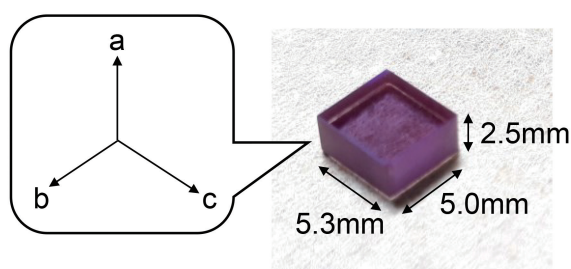


図2 アレキサンドライト結晶.

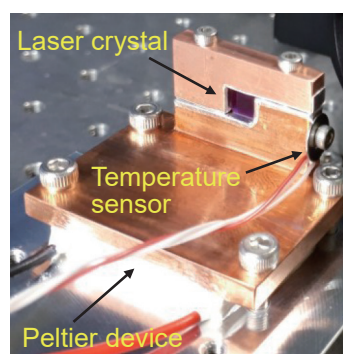


図3 結晶マウント.

3.2 励起光源

励起光源には，表1に示す2種類のLDを用いた。波長637nm及び波長680nmでの励起はそれぞれ 4A_2 準位から 4T_2 準位への励起及び 4A_2 準位から 2E 準位への励起に対応している。いずれのLDも20 $^{\circ}$ Cの動作温度において1W以上の光出力が可能である。各LDのエミッターサイズやビーム拡がり角は異なるため，励起光をレーザー結晶へ集光するための励起光学系はそれぞれ別々に構築する必要がある。図4に励起光学系の構築に向けた予備実験の構成を示す。光源には，波長637nmのLDを用いて示される励起光学系を構成した。また，励起光学系に使用したレンズの仕様を表2に示す。レンズ表面での反射損失を考慮すると，励起光学系は可能な限りシンプルな構成が良いため，最初に図4(a)に示されるようなシンプルな構成で励起用LDのビームの集光を行った。 L_1 は，LDの速軸方向をコリメートするためのレンズであり，焦点距離を8mmとした。 $\lambda/2$ 波長板は，励起光の偏光方向をレーザー結晶のb軸に一致させるために用いる。遅軸方向のビーム拡がり角は， L_1 で一度変化してしまうが，これは最終的にシリンダリカルレンズ CL_1 によりコリメートされる。ビーム全体のコリメートが完了した後， L_2 により，励起光が集光される。この構成での集光スポット径の測定結果を図5(a)に示す。ビーム径の測定は，ナイフエッジ法により行った。この構成における速軸方法及び遅軸方向の集光スポット径はそれぞれ

57 μm 及び 227 μm であった。測定されたビームスポット径は、まだ大きく、特に遅軸方向のビーム径が 200 μm 以上もあったため、遅軸方向に対してビームエキスパンダを導入することにより集光前のビーム径を拡大し、さらに集光用レンズの焦点距離を短くすることとした。この設計方針に基づき構成した最適化後の励起光学系を図 4(b) に示す。図 5(b) に示されるように、励起光学系の最適化の結果、集光位置での速軸方法及び遅軸方向のビーム径はそれぞれ 19 μm 及び 113 μm となった。以上の実験結果を踏まえ、波長 680nm の LD の方も同様に、ビームエキスパンダを用いた励起光学系を構築することとした。図 4(b) の励起光学系を用い、レンズ間距離などを最適化した後、測定した波長 680nm の LD の集光スポット径の測定結果が図 5(c) であり、速軸方向及び遅軸方向の集光ビームスポット径はそれぞれ 18 μm 及び 113 μm であることがわかった。

表 1 励起用 LD の仕様.

	波長 637nm 励起用	波長 680nm 励起用
メーカー・型番	Thorlabs L637G1	Frankfurt Laser Company FLX-680-1800M-300
中心波長 [nm]	637	680
最大光出力 [W]	1.2	2
エミッターサイズ [μm]	80	300
ビーム拡がり角 [$^{\circ}$]	10 (slow axis), 32 (fast axis)	7 (slow axis), 40 (fast axis)
パッケージ	TO-9	C-mount

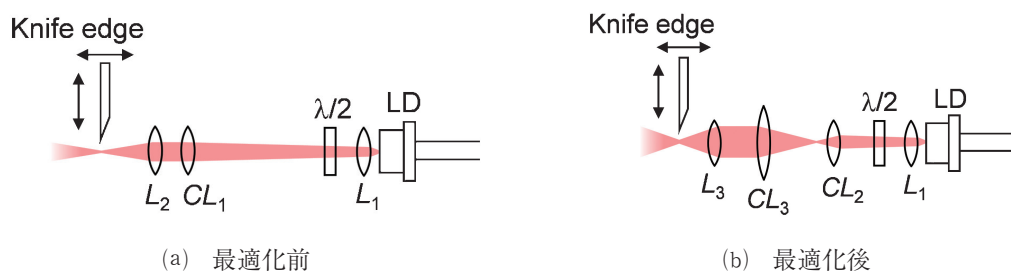
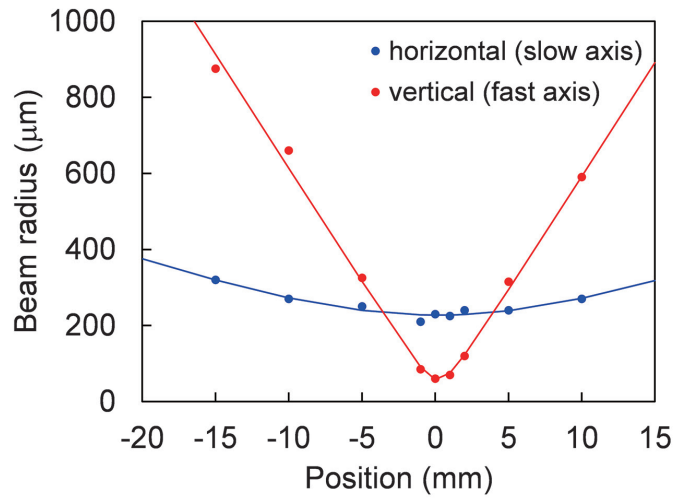


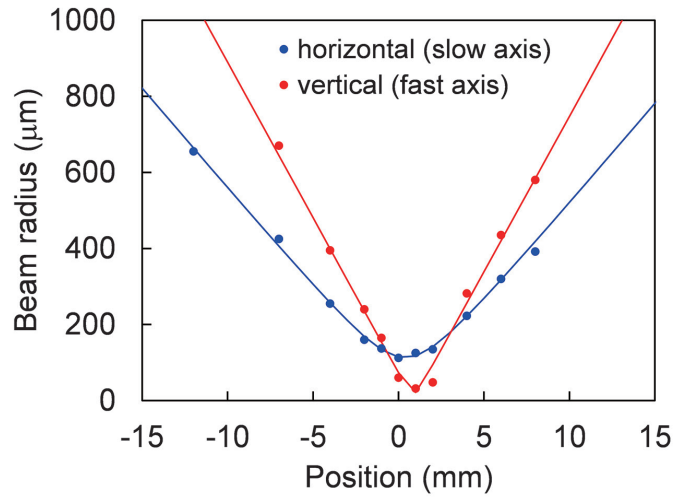
図 4 励起光学系の構成.

表 2 励起光学系に用いたレンズの仕様.

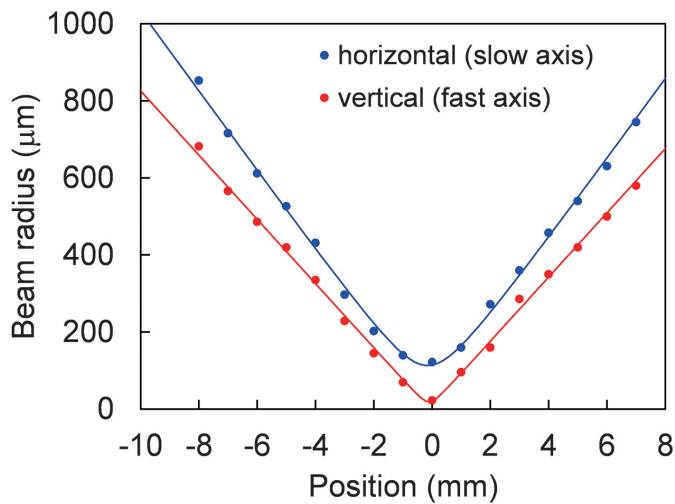
	L_1	CL_1	L_2	CL_2	CL_3	L_3
焦点距離 [mm]	8	200	60	19	50	48
シリンダリカル レンズ		○ (slow axis)		○ (slow axis)	○ (slow axis)	



(a) 637nm LD (最適化前)



(b) 637nm LD (最適化後)

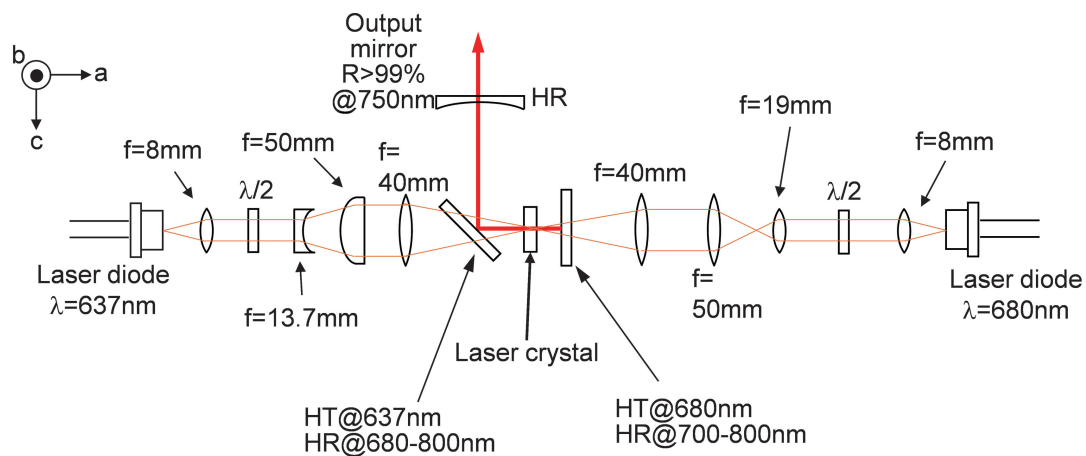


(c) 680nm LD (最適化後)

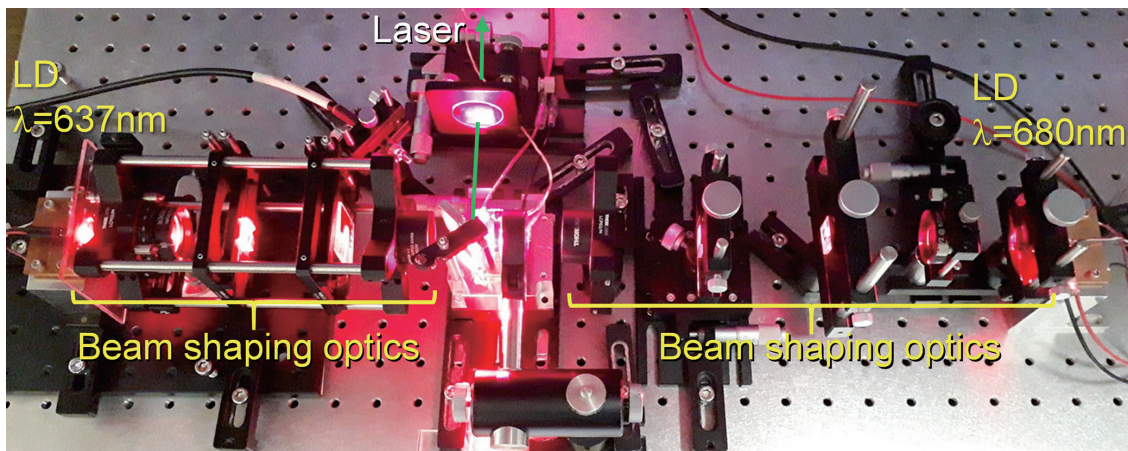
図5 励起光の集光スポットサイズの測定結果.

3.3 光共振器

図6に試作したアレキサンドライトレーザーの構成を示す。光共振器は、波長637nm(励起光)において透過率96%、波長750nm(レーザー光)において反射率99.3%以上となるダイクロイックミラーで折り返したL字型ファブリーペロー共振器とした。この構成により、レーザー結晶の両端面から異なる2波長での励起が可能になっており、これにより励起波長の違いによる特性を評価する。波長637nmのLDの励起光学系は、光学定盤上の配置の都合上、省スペース化を行う必要があったため、図4(b)のケプラー式ビームエキスパンダとほぼ等価なガリレオ式ビームエキスパンダに置き換えた。また集光用レンズの焦点距離は、配置が可能な最短の値とするため40mmとした。各励起用LDの偏光は、レーザー結晶での励起光の吸収が最大となるように $\lambda/2$ 波長板により調整し、レーザー結晶のb軸に一致させている。励起用LDの波長もまた、励起光吸収率が最大となるように、温度同調により調整した。



(a) 共振器構成



(b) 試作したレーザー

図6 アレキサンドライトレーザーの構成。

4 実験結果

構築したレーザーを用いて、レーザー設計の基礎となる分光測定を行った。図7(a)及び(b)にそれぞれ波長637nm及び680nm励起下における蛍光スペクトルの測定結果を示す。蛍光スペクトルは、光ファイバー結合型の光スペクトラムアナライザ (Spectral Products社製SM442-USB)を用いて測定した。波長分解能は0.6nm以下である。光ファイバプローブは、励起光の光軸を外し、レーザー結晶周囲の散乱光を観測できる位置にセットした。蛍光強度の強さは、利得の大きさに相当するため、想定される発振波長750nmでの蛍光強度に注目し、結晶温度依存性を評価した。図7(a)では、波長637nm付近にスペクトルのピークが一つ確認できるが、これは励起用LDの光である。また、電子遷移となる 2E 準位から 4A_2 準位への遷移に伴う蛍光スペクトルは線スペクトルとなっており、 4T_2 準位から振動準位に終端する遷移に伴う蛍光スペクトルは波長700nm付近にピークを持つブロードなスペクトルであることが確認できた。蛍光強度の温度依存性については、図1に示したエネルギー遷移過程から予想された通り、熱的に結合されたように振る舞う 4T_2 - 2E 準位におけるボルツマン分布に起因し、高温条件下では長波長側の蛍光強度の増大が実証された。このとき、 2E 準位からの蛍光の放射に対応する短波長側 (~680nm)の蛍光強度は減少しており、この結果もまた 4T_2 - 2E 準位における熱的効果の裏付けとなっている。一方、図7(b)に示されるように、波長680nmでの励起下では、波長637nmでの励起下とは異なる結果が得られ、短波長側の広い範囲 (<740nm)において温度上昇と共に蛍光強度が減少した。励起波長による温度依存性の違いの原因の一つとしては、レーザー上準位からの励起状態吸収 (Excited-state absorption; ESA) が考えられる。ESAにはレーザー光に起因するものと励起光に起因するものがあり、このうちレーザー光に起因するESAは、波長760~780nmの領域では、ほぼ無視できることが知られている⁷⁾。一方、励起光に起因するESAは、波長600nm以下では、 4T_2 準位のさらに上の準位である 4T_1 準位へのESAが強く起こることが知られている⁸⁾。この点については、今回の実験で使用した励起波長は、いずれも強い影響はないと考えられる。比較実験の結果、波長750nm付近での発振を想定した場合、波長637nm励起では結晶温度を高めた方が発振に有利であ

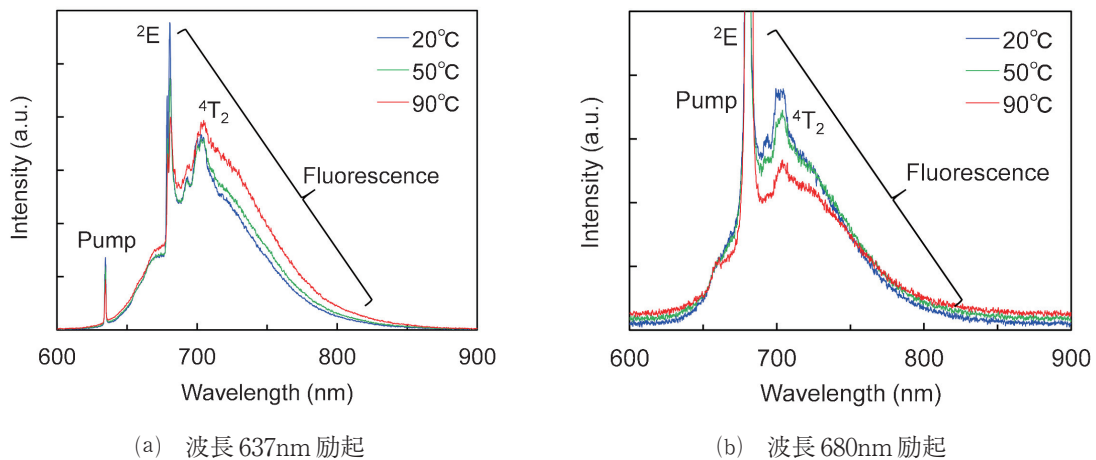


図7 蛍光スペクトルの測定結果.

り、波長 680nm 励起では結晶温度の違いによる顕著な差はないことがわかった。レーザー開発という観点では、波長 680nm の吸収線は線スペクトルであるため、この波長で励起する場合には正確な励起波長の制御が必要になると共に、励起用 LD の発振線幅も狭くする (< 1nm) 必要があるため、波長 637nm での励起の方が励起光減の入手やレーザーの構築が容易である。従って、本研究における励起条件としては、励起波長は 637nm 付近、その時のレーザー結晶温度は 50～90℃程度とすることとした。なお、今回の蛍光測定では、時間応答や励起強度依存性を見ていないため、誘導放出断面積と反転分布密度の積で与えられる利得係数の内訳までは切り分けができていない。つまり、結晶温度の違いによる蛍光強度の変化が反転分布密度の変化のみによるものなのか、あるいは誘導放出断面積も変化しているのか、その点は今後明らかにする必要がある。これは、特に本研究が目指している Q スイッチ素子を用いたパルス発振動作を行う際に重要となる。

5 動作解析

以上の実験で得られた結果に基づき、発振可能性の検討を行った。計算には、次式で与えられるレート方程式モデルを用いた⁹⁾。

$$\frac{dn_2}{dt} = -c\sigma_{em}\phi n_2 + c\sigma_{gsa}\phi n_1 - \frac{n_2}{\tau_f} + W_p n_1, \quad (1)$$

$$N = n_1 + n_2, \quad (2)$$

$$\frac{d\phi}{dt} = c \frac{l}{l_c} (\sigma_{em} n_2 - \sigma_{esa} n_2 - \sigma_{gsa} n_1) \phi - \frac{\phi}{\tau_c}, \quad (3)$$

ここで、 N は Cr ドープ密度、 n_1 及び n_2 はそれぞれ基底準位及びレーザー上準位の Cr イオン密度、 σ_{em} は誘導放出断面積、 σ_{gsa} は基底準位からの吸収断面積、 σ_{esa} は ESA の吸収断面積、 l はレーザー結晶長、 l_c は共振器長、 ϕ は共振器内のレーザー光子密度、 τ_c は共振器内の公氏減衰時間、 τ_f はレーザー上準位寿命、 W_p は励起レート、 c は光速を表す。計算に用いたパラメータは、可能な限り実験で得られた値と一致させた。実験での励起ビームスポットは楕円形であったため、等価な断面積の円形ビームを仮定し、そのサイズを 60 μm とした。共振器モード径は、曲率半径 100mm の出力鏡と平面全反射鏡により構成される長さ 99mm のファブリーペロー型共振器において、レーザー結晶を全反射鏡から 10mm の位置に配置することを想定し、100 μm と仮定することとした。発振波長は 750nm であると仮定しているため、前述した通り、ESA の影響は少ないと考えられ、計算ではこの項は無視した。これらの条件の下での波長 637nm 励起による入出力特性の解析結果を図 8 に示す。図 8(a) では、出力鏡反射率 R を 97～99% の範囲で変化させ、発振しきい値の温度依存性を計算した。その結果、出力鏡反射率が高いほど、また結晶温度は高温ほど発振しきい値が低くなることがわかった。ただし、この計算では入出力特性のスロープがわからないため、次に図 8(b) に示される入出力特性の計算を行った。発振しきい値だけを考えれば、出力鏡反射率が高い方が良いが、その反面、スロープ効率が低下してしまうため、最大出力を大きく取るには出力鏡反射率をある程度、低くする必要がある。

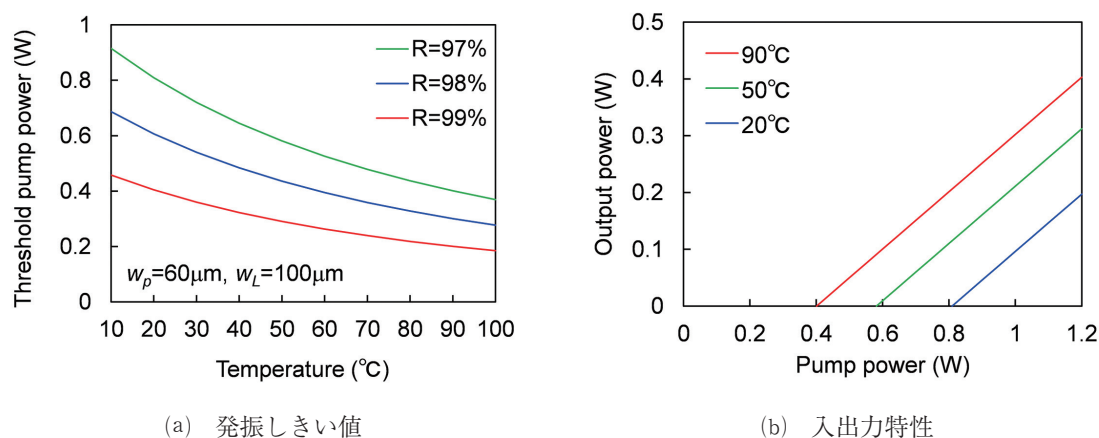


図8 レーザー発振の動作解析結果.

そこで、図8(b)の計算では $R = 97\%$ とした。動作解析の結果、開発中のレーザーでは、片方からの励起だけでも1W以上の励起パワーが利用できるため、十分に発振可能性があり、また出力パワーとしてはサブワットレベルまで期待できることがわかった。

6 まとめ

本研究では、LD励起アレキサンドライトレーザーを試作し、レーザー設計に必要な励起条件や分光データを取得した。励起光学系の最適化により、円形断面に換算して $100\mu\text{m}$ 以下の励起光集光スポットが達成できることを実証した。また、分光測定の結果及びシステム構築上の利点から、レーザー結晶温度を高温(50~90°C)とし、波長637nm付近の赤色LDで励起することが動作条件として最適であることを明らかにした。さらに、レート方程式モデルを用いた動作解析により、開発中のレーザーは、サブワットレベルでの連続発振が可能であることを示した。現在、本研究はレーザー発振実験に移行しており、励起光パワーの増強による高出力化なども進めている。

謝辞

本研究は、東北工業大学研究支援センター 学内公募研究(萌芽型)の助成を受け、実施されたものである。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) D. Li, H. Zhang, B. Chen, Y. B. Zhao, W. J. Wu, Y. Yuan, and Z. X. Ying, "Experimental investigations on thermal effects of a long-pulse alexandrite laser on blood vessels and its comparison with pulsed dye and Nd:YAG lasers", *Lasers Med. Sci.* vol. 35, no. 7, pp. 1555-1566, Sept. 2020.
- 2) A. Munk, M. Strotkamp, M. Walochnik, B. Jungbluth, M. Traub, H.-D. Hoffmann, R. Poprawe, J. Höffner, and F.-J. Lübken, "Diode-pumped Q-switched alexandrite laser in single longitudinal mode operation with watt-level output power", *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 22, pp. 5492-5495, Nov. 2018.
- 3) A. Munk, B. Jungbluth, M. Strotkamp, H.-D. Hoffmann, R. Poprawe, J. Höffner, and F.-J. Lübken, "Diode-pumped alexandrite ring laser in single-longitudinal mode operation for atmospheric lidar

- measurements”, *Opt. Express*, vol. 26, no. 12, pp. 14928-14935, June 2018.
- 4) W. Koechner, *Solid-State Laser Engineering, 6th ed.* (Springer, New York, 2006).
 - 5) G. Tawy, A. Minassian, and M. J. Damzen, “High-power 7.4W TEM₀₀ and wavelength-tunable alexandrite laser with a novel cavity design and efficient fibre-coupled diode-pumping”, *OSA Continuum*, vol. 3, no. 6, pp. 1638-1649, June 2020.
 - 6) U. Demirbas, A. Sennaroglu, and F. X. Kärtner, “Temperature dependence of alexandrite effective emission cross section and small signal gain over the 25-450°C range”, *Opt. Mater. Express*, vol. 9, no. 8, pp. 3352-3370, Aug. 2019.
 - 7) W. R. Kerridge-Johns and M. J. Damzen, “Analytical model of tunable Alexandrite lasing under diode end-pumping with experimental comparison”, *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 33, no. 12, pp. 2525-2534, Dec. 2016.
 - 8) H. Ogilvy, M. J. Withford, R. P. Mildren, and J. A. Piper, “Investigation of the pump wavelength influence on pulsed laser pumped alexandrite lasers”, *Appl. Phys. B*, vol. 81, no. 5, pp. 637-644, Sept. 2005.
 - 9) R. C. Sam, J.-J. Yeh, K. R. Leslie, and W. R. Rapoport, “Design and performance of a 250 Hz alexandrite laser”, *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 24, no. 6, pp. 1151-1166, June 1988.