特 集

カラーセンターレーザー

黒堀利夫*・竹内 望**

(1989年8月31日 受理)

Color Center Lasers

Toshio KUROBORI* and Nozomu TAKEUCHI**

(Received August 31, 1989)

Color centers—electrons trapped by the defects in insulating crystals—can be used for optically pumped lasers, which are broadly tunable over a wide range of ultraviolet, visible, and most importantly, infrared of 0.8–4 μm . Almost all the color center lasers are capable of cw and cw-mode-locked operation. In this paper, the recent progress in the stabilization of laser-active color centers, extension of the tuning range of color center lasers, typical performance of the lasers, and development of new femtosecond sources in the infrared are discussed.

Key words : Color center laser, Alkali halide crystals, Mode locking, Femtosecond, Soliton laser.

1. はじめに

カラーセンターレーザー (Color Center Laser: CCL) は, KCl, NaCl, NaF などのアルカリハライド結晶に放射線照射や付加着色[†]によって導入された点欠陥 (色中心) のルミネッセンスを利用してレーザー発振を得るものである。これは、色素レーザーより長波長領域でのチューナブル・レーザーの一つとして貴重な存在であり、これまでに各種の色中心と母結晶

を組み合わせたCCLが開発され、波長0.8～4 μm の近・中赤外領域をカバーし得るようになってきた^{1,2)}。この領域でのCCLの応用は多岐にわたるが、特に光ファイバー中の非線形効果を積極的に利用して、数十フェムト秒 (10^{-14} 秒) の超短光パルス発生を可能にしたソリトンレーザー³⁾ および Additive - Pulse Mode Locking (APM)⁴⁾ などの新技術は、CCLの開発によって初めて実現されたものである。さらに、原子や分子などの各種高分解能分光、化学反応や環境汚染分析、半導体物理などの研究におけるチューナブル・ソースとしても広く用いられてきている。

本稿では、まず、代表的なCCL材料の特性、共振器構成について触れ、次に、その出力特性、

[†] 母結晶を構成する金属 (あるいはハロゲン) の蒸気中で加熱して着色する方法。一般に、アルカリハライド結晶に点欠陥が導入されると固有の色を示すので点欠陥の導入のことを着色という。例えば、NaClの場合、Na蒸気中で600～700℃で加熱すると黄色になる。

* 金沢大学教育学部電気工学教室 (〒920 金沢市丸の内1-1)

** 金沢大学工学部応用物理学教室 (〒920 金沢市小立野2-40-20)

* Faculty of Education, Kanazawa University, (1-1 Marunouchi, Kanazawa 920)

** Faculty of Engineering, Kanazawa University, (2-40-20 Kodatsuno, Kanazawa 920)

発振波長領域の拡大, 発振スペクトルとその制御など, これまで実現されてきた各種性能について述べる。さらに, 筆者らが行ったシンクロナスムード同期CCLのモード同期特性について具体例を掲げ詳述し, 次に, CCLの一つの応用として, ソリトンレーザー, APM法による数十フェムト秒光パルス発生の現状について簡述する。CCLに関して, これまでにもいくつかの詳しい解説^{1, 2, 5-10)}もあるので, それらも合わせて参照していただきたい。

2. CCL 材料と共振器構成

CCLの最初の報告は, 1965年 Fritz と Menke ら¹¹⁾によるKCl:Liの $F_A(II)$ 中心を用いたパルス発振であったが, 今日のように近・中赤外領域でなくてはならない光源として脚光を浴びるようになったのは, 1974年Mollenauer ら¹²⁾による連続発振(CW)CCLが実現してからである。その後, 動作時の劣化がなく, また室温での保存に耐える安定な材料の開発と並行してレーザーの各種性能の向上がなされてきた。

2.1 色中心

広義には, 光吸収を起こす透明な結晶中の欠陥はすべて色中心と呼ばれているが, ここでは色中心という言葉, 格子欠陥に捕獲された1個以上の電子あるいはホールからなる点欠陥と定義する。このように定義するとこれまで開発されてきた色中心は, 次の3つの型に分類することができる。(1)各種母結晶中の $F_A(II)$, $F_B(II)$, F_2^+ , $(F_2^+)_A$, F_2 , $(F_2^+)^*$, $(F_2^+)^{**}$, $(F_2^+)_H$, $(F_2^+)_H$ などのようにイオン空孔中に電子が捕獲された, いわゆる, 空孔が支配的な色中心。(2)KCl, KBr中の $Tl^0(1)$, KCl中の $Ag^0(1)$, CsCl中の $F_H(CN^-)$, $KMgF_3$ 中の $Pb^+(1)$, ダイヤモンド中の H_3 中心などのような不純物がイオン空孔に隣接している, いわゆる, 不純物が支配的な色中心。(3)KBr中の O_2^- , KBr中の CN^- 中心などのようにイオン空孔に関係しない不純物中心。

しかしながら, これらの各種色中心のうちで実用的なCCLとして用いられてきているのは主に, (1)の分類に属する, 空孔が支配的な色中心だけである。

Fig.1に, F中心および代表的なレーザー活性な色中心のイオン構造を示す。F中心は, 負のイオン空孔に1個の電子が捕獲されたもので, 発光過程の振動子強度が小さく, 十分な増幅利得が得られないなどの理由により, それ自身レーザー発振には適さない。 F_A , F_B 中心は, それぞれ, 同様な空孔の周囲の6個の正イオンの1個および2個が異種イオンに置き換ったものである。この F_A , F_B 中心はその緩和イオン配位にしたがって, タイプIとタイプIIに分類される。しかし, レーザー発振は, 緩和励起状態(Relaxed Excited State: RES)において, 二重井戸型のポテンシャル構造をとるタイプII($F_A(II)$ および $F_B(II)$ と書く)に限られる。また, F_2^+ 中心は, $[110]$ 最隣接位置に配位した2個の負イオン空孔に電子が1個捕獲されたものであり, $(F_2^+)_A$ 中心は, 同様な配位で1個の正イオンが異種イオンに置き換ったものである。図には示されていないが, NaF結晶に Mn^{2+} , Ni^{2+} などの2価の遷移金属イオンをドーブした $(F_2^+)^*$ 中心, OH^- イオンをドーブした $(F_2^+)^{**}$ 中心もある。また, 最近開発され, 熱的, 光学的にも安定な O_2^- イオンをドーブした $(F_2^+)_H$ 中心, さらに, これに1個の正イオンが異種イ

Fig.1 The F center and associated laser active centers.

ンに置き換った $(F_2^+)_{AH}$ 中心などがある。

このような色中心においては、1 s 基底状態から外部励起により 2 p 励起状態へ上げられた電子は、無輻射遷移で格子系へエネルギーを移して発光の始状態である RES へ移るが、この時間は発光の寿命時間に比較して十分速く、レーザー発振に必要な反転分布が実現できる。さらに発光して基底状態に遷移した直後にも緩和が起こり、吸収前の基底状態となる。このように CCL は、4 準位レーザーを形成している。

Table I に上述した代表的な色中心に着目して、そのレーザー材料としての諸特性をまとめて示す。表に示す波長可変範囲は、 F_2^{+*} 中心を例にとれば、母結晶を NaF, LiF, KF, NaCl, KBr と置き換えることにより、全体として波長 0.8~2.5 μm 領域をカバーできることを示している。これらの色中心の導入法として、電子線、X線などの放射線照射と付加着色法があることは、既に述べたが、一般に、 $F_A(II)$, $F_B(II)$, $Tl^0(I)$, $(F_2^+)_{A^*}$, $(F_2^+)_{H^*}$, $(F_2^+)_{AH}$ 中心などのように付加着色可能な色中心が、放射線照射によるものに比べてはるかに安定である。これは、放射線照射の場合、電子捕獲中心とホー

ル捕獲中心の両方が同時に形成されるためである。これらの色中心によるレーザー発振は、通常液体窒素温度で行なわれる。

2.2 共振器構成

CW CCL は、 10^{17} 個 cm^{-3} 程度の色中心を含む厚さ 1~2 mm の結晶でも大きな増幅利得が得られることから、基本的には CW 色素レーザーと同様な折れ曲り 3 枚反射型共振器構成¹³⁾を用いることができる。

Fig. 2 に、実験に用いた 4 枚鏡からなる定在波型線形共振器構成を示す。この構成は、目的に応じて進行波型リング共振器構成¹⁴⁾に容易に変換できる利点を持つ。この図は、NaCl: O_2^- 中の $(F_2^+)_{H^*}$ 中心を用いたシンクロナスモード同期の共振器構成となっているが、もちろん、CW 動作として用いることもできる。NaCl: O_2^- $(F_2^+)_{H^*}$ CCL の場合、励起光源として Nd: YAG あるいは Nd: YLF レーザーが用いられる。さらに、この色中心に対しては、 Ar^+ イオンレーザーなどの補助光源を必要とする。実験結果の詳細は、4.1 で述べる。結晶は図に示すように、ブルースター角度でクライオ

Table I Properties of color center laser materials.

Color Center	Tuning Range (μm)	Storage Temperature	Operation Lifetime	Problems	Advantages
$F_A(II)$ $F_B(II)$	2.2 - 3.6	0°C	Years	Low power, small class	Completely stable, many pump bands, mode-locked
$Tl^0(I)$	1.4 - 1.7	0°C	Years	Difficult crystal growth, class of one	Reasonably stable, good power, mode-locked, useful range
F_2^+	0.8 - 2.5	77K	Days	Deterioration while lasing	Broad range, high power, mode-locked
$(F_2^+)_{A^*}$	1.6 - 4.0	0°C	Months	Auxiliary light, suitable pump lasers	Stable, good power, wide tuning range, mode-locked
$(F_2^+)_{H^*}$ $(F_2^+)_{AH}$	1.0 - 1.4	20°C	weeks, several hours	Deterioration while lasing, small class	Useful range
$(F_2^+)_{H^*}$ $(F_2^+)_{AH}$	1.4 - 2.2	20°C	Months+	Auxiliary light	Reasonably stable, good power, useful range, mode-locked

Fig. 2 Schematic diagram of an $\text{NaCl}:\text{O}_2^- (\text{F}_2^+)_\text{H}$ color center laser configuration. M_1 , Dichroic mirror; M_2 and M_3 , Folded section mirrors; M_4 , Output coupler; B_1 and B_2 , Brewster windows; L, Lens; Xtal, $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ center crystal.

スタットの冷却棒上に取り付けられ、液体窒素温度 (LNT) に冷却される。真空チャンバー中の鏡 M_2 , M_3 は、金属ベローズを介して、外部から微調できるようになっている。

CCLの波長選択素子としては、複屈折フィルター、溶融石英、サファイヤなどのプリズム、および出力カップラーと波長選択を兼ねた回折折格子などが用いられる。また、市販のCCL装置を利用できない場合自作を必要とするが、これらに関しては、文献1, 2, 15)などが参考になる。

3. CCLの各種性能

3.1 出力

Table II に代表的なCCLの出力特性を示す。一般に、CW CCLの場合、励起光源として Ar^+ , Kr^+ イオンレーザーや Nd:YAG レーザーなどが用いられている。しかし応用によっては、高いピークパワーのパルス動作を必要とする場合もあり、このような目的に対しては、これまでに窒素レーザー励起色素レーザー³¹⁾、フラッシュランプ励起色素レーザー³²⁾、銅蒸気レーザー³³⁾、YAG レーザーの第2高調波励起³⁴⁾によるパルス動作CCLも報告されてきている。最近、ダイオードアレイ励起によるCW CCLの発振が、 $\text{NaF}:\text{Mg}^{2+}$ 中の $(\text{F}_2^+)^*$ 中心を用いて行なわれ、入力 400 mW に対して、出力 7.8 mW が波長 $1.03 \sim 1.12 \mu\text{m}$ で得られている³⁵⁾。現在のところ、1 W 以上の高い出力パワーは波長 $0.9 \mu\text{m}$ 付近および $1.3 \sim 1.7 \mu\text{m}$ 領域に限られている。また、入力特性の測定から求められるスロープ効率も、ストークスシフトの小さい F_2^+ , $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 中心で 60%, $\text{F}_\text{A}(\text{II})$, $\text{F}_\text{B}(\text{II})$ 中心で 2~10 % である。

Table II Performance of some color center lasers.

Color Center	Host Crystal	Tuning Range (μm)	Pump Source & Wavelength (nm)	Threshold Pump Power (mW)	Max. Output Power (mW)	Slope Efficiency (%)	References
$\text{F}_\text{A}(\text{II})$	KCl:Li RbCl:Li	2.30 - 3.10 2.50 - 3.60	Kr-L 647 Kr-L 647	13 60	240 55	9.1 2	5, 16, 17 5, 16, 17
$\text{F}_\text{B}(\text{II})$	KCl:Na	2.20 - 2.70	Ar, Kr-L 514/568	20	35	2.3	5, 16, 17
$\text{Ti}^0(1)$	KCl:Ti KBr:Ti	1.40 - 1.64 1.52 - 1.73	Nd:YAG 1064 Nd:YAG 1064		1100 113	9 6	18, 19 19
F_2^+	LiF NaF KF NaCl KBr	0.82 - 1.05 0.80 - 1.14 1.22 - 1.50 1.45 - 1.75 1.61 - 2.08	Kr-L 647 Kr-L 647 Nd:YAG 1064 Nd:YAG 1064 Nd:YAG 1340	60 40 50 20 110	1800 11 2700 150 1	60 10 60 5 5	20 21 20 5 5
$(\text{F}_2^+)_\text{A}$	KCl:Na KCl:Li KI:Li	1.62 - 1.91 2.00 - 2.50 2.38 - 3.99	Nd:YAG 1340 Nd:YAG 1340 Er:YLF 1730	10 5 6 mJ (pulsed)	12 25 0.3 mJ	18 7 3	22 23 24
$(\text{F}_2^+)^*$	NaF	0.99 - 1.22	$\text{LiF}:\text{F}_2^+$ 870	15	400	25	25, 26
$(\text{F}_2^+)^{**}$	NaF	1.08 - 1.38	$\text{LiF}:\text{F}_2^+$ 870	130		34	27
$(\text{F}_2^+)_\text{H}$	$\text{NaCl}:\text{O}_2^-$ $\text{KCl}:\text{O}_2^-$ $\text{KBr}:\text{O}_2^-$	1.41 - 1.81 1.66 - 1.97 1.86 - 2.16	Nd:YAG 1064 Nd:YAG 1340 Nd:YAG 1340		2200 170 30	60 26 11	28, 29, 30 29 29
$(\text{F}_2^+)_\text{AH}$	$\text{KCl}:\text{Na}^+:\text{O}_2^-$	1.71 - 2.15	Nd:YAG 1340		270	15	30

3.2 発振波長領域の拡大

これまでCCLを波長 $0.8 \sim 4 \mu\text{m}$ の近・中赤外領域でのチューナブル・レーザーとしてだけ述べてきたが、紫外、可視領域でのレーザー発振もいくつか報告されてきている。Henderson³⁶⁾は、アルカリ土類酸化物のCaO結晶を用い波長 $357 \sim 420 \text{ nm}$ で出力 15 mW を得ている。しかし純度の高い材料の入手、取り扱いに問題がある。また、LiF結晶の F_2 中心^{37, 38)}および F_3^+ 中心³⁹⁾を用いた波長 670 nm , 530 nm 付近での室温パルス発振の報告もなされているが実用的な光源とはいえない。さらに、ダイヤモンド中の H_3 中心を用いた波長 530 nm 付近での室温パルスレーザー発振⁴⁰⁾も報告されている。

Kochら¹⁷⁾は、KClあるいはRbCl母結晶中に同時に $F_A(II)$, $F_B(II)$ 中心といった異なる2つの色中心を形成することにより、また、Schneiderら⁴¹⁾は、KCl母結晶中に同時にNa, Liによる異なる2つの $(F_2^+)_A$ 中心を形成することにより、波長可変範囲の拡大を試みてきた。しかしながら、最適状態で異なる2つの色中心を単一母結晶中に形成することは難しく、波長の拡大は実現できても、逆に出力は単一色中心を形成した場合に比べてかなり低下するという結果を得ている。

3.3 発振スペクトルとその制御

CCLは、活性媒質が固体であることから、ジェット・ストリームを用いるCW色素レーザーと異なり、容易に狭い発振スペクトル線幅を得ることができる。Beigangら⁴²⁾は、CWCCLのスペクトル線幅は、レーザー共振器内の光学的長さの変動により決定され、この変動はレーザー系の機械的不安定性とレーザー活性領域の温度変動により生じると報告しているその中で、彼らはCCLの周波数偏位の測定から全線幅は 25 kHz 以下が可能であると指摘している。最近、Pollockら⁴³⁾は、KCl:Li結晶の $F_A(II)$ 中心を用い線幅 10 kHz 以下を達成している。

また、分布帰還型(DFB)レーザーは、外部鏡やへき開面を共振器として用いる必要がない

ため、非常にコンパクトな波長選択性の良い光源として、これまで色素レーザー、半導体レーザーに適用されてきた。Bjork-干渉法により、KCl:Li結晶中に $F_A(II)$ 中心の周期構造を形成し、lundら⁴⁴⁾は、波長 $2.6 \sim 2.8 \mu\text{m}$ で線幅 0.2 nm 以下、ピークパワー 5 kW を変換効率 6.7% で得ている。筆者らは、LiF結晶中の F_2 中心を用いた室温でのDFB CCLの発振を報告してきた^{45, 46)}。

4. モード同期による超短光パルスの発生

最近の超短光パルス発生技術の進展はめざましく、Colliding Pulse Mode Locked(CPM)リング色素レーザーの開発および新しいパルス圧縮法の進歩により、最小パルス幅 6 fs ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$)が波長 620 nm 付近で得られている⁴⁷⁾。現在、さらに短パルスの発生、それを用いた応用など、たゆまぬ努力がなされてきている⁴⁸⁾。

CCLの場合、超短光パルス発生方法として次の2つが考えられる。1つは、従来から他のレーザーにも適用されてきた、シンクロナスモード同期、受動モード同期、強制モード同期法などを用いて発振器から直接にサブピコ秒(10^{-13} 秒)台のパルスを得るものである。2つめは、波長 $1.5 \mu\text{m}$ 付近で発振するモード同期CCLと光ファイバーとを結合させて、数十フェムト秒台のパルス発生が可能な、ソリトンレーザー、APM法を用いるものである。ここでは、まず前者の方法として筆者らが行なったNaCl:O₂⁻中の $(F_2^+)_H$ 中心を用いたシンクロナスモード同期による超短光パルス発生⁴⁹⁾について具体例を掲げ詳述した後、後者の方法でのフェムト秒光パルス発生の現状について簡述する。

4.1 NaCl:O₂⁻(F₂⁺)_H CCLのモード同期特性

NaCl:O₂⁻(F₂⁺)_H CCLは、Table IIに示したように $1.41 \sim 1.81 \mu\text{m}$ でチューナブルであり、これまでCW出力として励起パワー 9 W に対して、マルチモードで 3.05 W 、シングルモードで 2.2 W が得られている⁵⁰⁾。また、これは動作時の劣

化がなく、室温での保存に耐えうることなどから現在、最も注目されている材料の一つである。NaCl : O_2^- 中の $(F_2^+)_H$ 中心は、適度の O_2^- イオンを含む NaCl 結晶を約 22.5 Torr の Na 蒸気中で 650°C, 2 時間加熱して付加着色を行ない、次に、UV 光を用いて F 帯照射を行なうことで形成される。波長 1.09 μm にピークを持つその広い吸収帯 (~ 250 nm) は、Nd : YAG や Nd : YLF レーザーを励起光源として用いることを可能にする。ここでは、Fig. 2 の共振器構成を用い、励起光源として Nd : YAG レーザーより短いパルスが発生できる Nd : YLF レーザーを用いたシンクロナスモード同期特性の実験結果について述べる。用いたモード同期 Nd : YLF レーザーは、波長 1.053 μm で繰り返し 76 MHz, パルス幅 60 ps, 出力 6 W (Fig. 2 の M_1 と B_1 の間で測定) であった。 $(F_2^+)_H$ 中心の配向退色を防ぐため、励起光源以外に、補助光源として Ar^+ イオンレーザーを用いた。

Fig. 3 に、モード同期 NaCl : O_2^- (F_2^+)_H CCL の平均出力パワーと補助光源 (Ar^+ イオンレーザー) のパワーとの関係を示す。発振波長 1.6 μm , 出力カップラーの透過率は 53% である。励起パワーに対して Ar^+ イオンレーザーの入力パワーは 50 mW 程度で十分であり、この入力パワーで飽和出力パワーの約 90% に達する出力を得ることができる。6 W 励起パワーに対して、CCL から平均出力 1.7 W (ピークパワー ~ 12.4 kW) が得られた。

Fig. 4 に、CCL のパルス幅 t_{CCL} と励起パルス幅 t_{PUMP} との関係を示す。励起パルス幅は、内部変調の深さを変えることにより 60 $\sim$ 140 ps の間で変化させた。 $t_{CCL} \sim t_{PUMP}^{0.51}$ の関係が得られ、出力パルス幅は、励起パルス幅の平方根に比例することが確かめられた。この結果は、CW 色素レーザーの理論的⁵¹⁾ および実験的⁵²⁾ 結果と一致する。さらに、励起パルス幅をファイバー回折格子対の圧縮法を用いて 5 ps 程度にすればシンクロナスモード同期法だけで、サブピコ秒あるいはそれを切る光パルス発生が可

Fig. 3 Average output power of a mode-locked NaCl : O_2^- (F_2^+)_H color center laser as a function of the auxiliary light intensity (P_{AUX}) for two different pump power levels (P_{YLF}).

Fig. 4 Pulse width of a color center laser as a function of the pump pulse width.

能であろう。

Fig. 5 は、自己相関波形を CCL の共振器長の変化の関数としてプロットしたものである。 $\Delta X = 0$ は、最短パルスが得られた位置に対応し、符号士は、それぞれ最適位置より CCL の共振器長が長い場合および短い場合に対応する。これらの一連の相関波形は、CW 色素レーザーと同様であるが、離調の度合いが、色素レーザーに比べて、クリティカルでないことがわかる。これは、おそらく、蛍光寿命時間が 150 ns と色素レーザーに比べて桁違いに長いことによ

Fig. 5 Autocorrelation traces as a function of the cavity length of a color center laser. For these curves: two stage birefringent filter, 53% output coupler, 6.0 W pump power, 1.7 W output power. ΔX is the mismatch length from the shortest pulse position.

るものであろう。また得られたパルスに対して、パルス幅スペクトル幅数 $\Delta t \Delta \nu$ は、パルス波形を sech^2 形と仮定し 0.32 が得られており、フーリ

エ変換限界パルスの値 0.315 にほぼ一致し、クリーンな光パルスが得られていることがわかる。

Table III Ultrashort light pulse generation by synchronously, actively and passively mode-locked color center lasers.

Color Center	Host Crystal	Tuning Range (μm)	Pulse Duration (ps)	$\Delta t \Delta \nu$	P_{out} (mW)	τ_r (ns)	σ_{emi} ($\times 10^{-17} \text{cm}^2$)	Techniques	References
$F_A(\text{II})$	KCl:Li	2.50 - 2.87	75	1.10		75	30	S-L	53
$\text{Ti}^{0+}(\text{I})$	KCl	1.40 - 1.60 ~ 1.50	8(S) 6(G)	0.30 0.50	1200 150	1600	1.3	S-L A-L	54 55
F_2^+	LiF	0.82 - 1.00 0.82 - 1.00 ~ 0.87 ~ 0.87 0.84 - 0.86	1.5(G) 0.7(G) 1.3(S) 0.39(S) 0.18(S)	0.50 0.49 0.90 0.65 0.32	30 20 10 16 16	29	10	S-L S-R P-L P-R P-R-GVD	56 56 57 57 58
$(F_2^+)_H$	$\text{NaCl}:\text{O}_2^-$	1.47 - 1.73 ~ 1.60 1.51 - 1.65	5(S) 1.8(S) 7(S)		450 1700 700	150	8.5	S-L S-L A-L	28 49 4

Abbreviations: S=squared hyperbolic secant, G=gaussian, $\Delta t \Delta \nu$ =time-bandwidth product, P_{out} =average output power, τ_r =radiative lifetime, σ_{emi} =emission cross sections, S-L=synchronous mode-locked, linear cavity, S-R=synchronous mode-locked, ring cavity, A-L=active mode-locked, linear cavity, P-L=passive mode-locked, linear cavity, P-R=passive mode-locked, ring cavity, P-R-GVD=passive mode-locked, ring cavity and group velocity dispersion compensation.

4.2 種々のモード同期CCL

Table III に、これまで報告されているシンクロナスモード同期，受動モード同期，強制モード同期法による超短光パルス発生の実状をまとめて示す。誘導放出断面積 σ_{em1} は，色素と同程度であるが，蛍光寿命時間 τ_r は，例えば $Tl^+(1)$ 中心の場合 1600 ns と長く，色素レーザーとは異なるいくつかのモード同期特性を示す¹⁸⁾。シンクロナスモード同期 CCL の場合の最短パルス幅は 0.7 ps である⁵⁶⁾。受動モード同期は，レーザー媒質として LiF 中の F_2^+ 中心，可飽和吸収体として IR 140 の色素を用いて行なわれた。この方法での最短パルスは 390 fs⁵⁷⁾，さらに群速度分散 (GVD) を補償したリング共振器を用いることにより 180 fs が波長 0.84~0.86 μm で得られている⁵⁸⁾。また，強制モード同期は，CCL 共振器内部に音響光学的変調器を挿入することにより達成され，最短パルス 6 ps が得られている⁵⁵⁾。

4.3 ソリトンレーザーおよび APM 法からの超短光パルスの発生

ソリトンレーザーおよび APM 法は，モード同期 CCL の開発によって初めて実現されたものであり，これにより赤外領域で従来のモード同期法を用いなくても数十フェムト秒台の光パルス発生が可能になった。この方法は，CW 色素レーザーで用いられている CPM 法と異なり，発振波長を限定する可飽和吸収体などを必要としないため広い波長範囲で超短光パルスを得ることができる。いずれの場合もマスター共振器として現在のところ，4.1 で述べたような波長

1.5 μm 付近で発振するモード同期 $NaCl: O_2^-(F_2^+)_H$ CCL あるいはモード同期 $KCl Tl^+(1)$ CCL が用いられている。ソリトンレーザーは，これにコントロール共振器として負の GVD を持つ単一モードファイバーをレーザーの共振器の一部に組み込むことによりファイバーの GVD と自己位相変調効果 (SPM) とが釣り合うことによって生じる安定なソリトンを出力として取り出す装置である。一方，APM 法は，同様な構成を用いるがソリトンの形成なしに超短光パルス発生が可能である。これは，ファイバー中で強く chirping を受けたパルスが共振器に戻る時，出力カップラー上で chirping を受けない元のパルスと干渉的に重なり合うことによって，パルスの裾の部分を消し合い超短光パルスを発生するものと説明できる。Table IV に，これらの方法による超短光パルス発生の実状をまとめて示す。ソリトンレーザーの共振器から直接には，波長 1.5 μm で 50 fs⁶¹⁾，さらに外部でのパルス圧縮により 19 fs が得られている⁶¹⁾。APM 法では，波長 1.51~1.65 μm で最小パルス幅 75 fs⁴⁾ が出力パワー 300 mW で得られている。

5. おわりに

現在，種々のチューナブル・レーザーあるいは非線形効果を利用する周波数変換技術の進歩により真空紫外から遠赤外領域に至る可同調なコヒーレント光を用いることができるようになった。この中で，CCL は主に波長 0.8~4 μm の近・中赤外領域において，高い出力，広い波長可変性，狭い発振スペクトル，超短光パルス

Table IV Ultrashort light pulse generation by the soliton laser and the additive-pulse mode locking.

Color Center	Host Crystal	Tuning Range (μm)	Pulse Duration (fs)	$\Delta t \Delta \nu$	P_{out} (mW)	Techniques	References
$Tl^+(1)$	KCl	~ 1.50	50(S)	0.32	30	Soliton Soliton+Compression APM	61
		~ 1.50	19(S)	0.32			61
		~ 1.50	380(G)	0.50			55
$(F_2^+)_H$	$NaCl:O_2^-$	1.51 - 1.65	75(S)	0.31	300	APM	4

Abbreviations: S=squared hyperbolic secant, G=gaussian, $\Delta t \Delta \nu$ =time-bandwidth product, P_{out} =average output power, APM=additive-pulse mode locking

発生などの諸機能を持っており、この領域では総合的に見て最も優れたレーザーであろう。

本稿では、CCLの応用としてソリトンレーザー、APM法だけを簡単に述べたにとどまったが、原子や分子などの各種高分解能分光研究への応用などについては、文献1)を参照していただきたい。CCLそれ自体の応用ではないが、LiF結晶の F_2^- 中心のように室温で熱的、光学的に安定な色中心は、Nd:ガラス、Nd:YAGレーザーのQスイッチやモード同期素子としても用いられている^{62, 63)}。

現在、CCLで劣化がない安定なレーザー動作は、波長1.3~1.8 μm および 2.0~3.6 μm 領域に限られているが、今後これ以外の領域での安定な材料の開発とともに、APM法を用いて赤外領域の広い波長範囲でフェムト秒台の光パルス発生が行なわれていくであろう。

最後に、本稿の4.1に関する実験は、筆者(黒堀)が、1988~1989年Alexander von Humboldt+奨学生としてハノーバー大学量子光学研究所で行なったものであり、滞在中大変お世話になったProf. H. Welling, Dr. R. Beigang, Dr. F. M. Mitschke および Mr. A. Nebelに感謝いたします。さらに、援助をいただいたAlexander von Humboldt Stiftungの各位に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) L.F. Mollenauer: in *Color Center Lasers* eds. M.L. Stitch and M. Bass (Laser Handbook Vol. 4, North-Holland, Amsterdam, 1985) Chap.2.
- 2) L.F. Mollenauer: in *Tunable Lasers* eds. L.F. Mollenauer and J.C. White (Topics in Applied Physics Vol. 59, Springer-Verlag, Berlin, 1987) Chap. 1 and 6.
- 3) L.F. Mollenauer and R.H. Stolen: Opt. Lett. 9 (1984) 13.
- 4) C.P. Yakymyshyn, J.F. Pinto and C.R. Pollock: Opt. Lett. 14 (1989) 621.
- 5) G. Litfin and H. Welling: LASER + Elektro-Optik, Nr. 1 (1982) 17.
- 6) 黒堀利夫, 竹内望: レーザー研究 11 (1983) 687.
- 7) 黒堀利夫, 竹内望: 応用物理 56 (1987) 1653.
- 8) 黒堀利夫, 竹内望: レーザー研究 16 (1988) 379.
- 9) A. Penzkofer: Prog. Quant. Electr. 12 (1988) 291.
- 10) C.R. Pollock, J.F. Pinto and E. Georgiou: Appl. Phys. B 48 (1989) 287.
- 11) B. Fritz and E. Menke: Solid State Commun. 3 (1965) 61.
- 12) L.F. Mollenauer and D.H. Olson: Appl. Phys. Lett. 24 (1974) 386.
- 13) H.W. Kogelnik, E.P. Ippen, A. Dienes and C.V. Shank: IEEE J. Quant. Electr. QE-8 (1972) 373.
- 14) K.W. Giberson, C. Cheng, F.B. Dunning and F.K. Tittel: Appl. Opt. 21 (1982) 172.
- 15) G. Litfin and R. Beigang: J. Phys. E 11 (1978) 984.
- 16) K.R. German: J. Opt. Soc. Am. B 3 (1986) 149.
- 17) K.P. Koch, G. Litfin and H. Welling: Opt. Lett. 4 (1979) 387.
- 18) L.F. Mollenauer, N.D. Vieira and L. Szeto: Opt. Lett. 7 (1982) 414.
- 19) W. Gellermann, F. Lütty and C.R. Pollock: Opt. Commun. 39 (1981) 391.
- 20) L.F. Mollenauer and D.M. Bloom: Opt. Lett. 4 (1979) 247.
- 21) L.F. Mollenauer: Opt. Lett. 1 (1977) 164.
- 22) I. Schneider and M. Marrone: Opt. Lett. 4 (1979) 390.
- 23) I. Schneider and C.L. Marquardt: Opt. Lett. 5 (1980) 214.
- 24) I. Schneider: Opt. Lett. 7 (1982) 271.
- 25) L.F. Mollenauer: Opt. Lett. 5 (1980) 188.
- 26) H. Eisele, H.J. Paus and J. Wagner: IEEE J. Quant. Electr. QE-18 (1982) 152.
- 27) L.F. Mollenauer: Opt. Lett. 6 (1981) 342.
- 28) J.F. Pinto, E. Georgiou and C.R. Pollock: Opt. Lett. 11 (1986) 519.
- 29) D. Wandt, W. Gellermann, F. Lütty and H. Welling: J. Appl. Phys. 61 (1987) 864.
- 30) D. Wandt and W. Gellermann: Opt. Commun. 61 (1987) 405.
- 31) D.J. Jackson, J.E. Lawler and T.W. Hänsch: Opt. Commun. 29 (1979) 357.
- 32) R. Beigang: Opt. Commun. 34 (1980) 249.
- 33) K. German and T.W. Karris: Proc. Intern. Conf. on Lasers 79 ed. V. Cocoran.
- 34) A.S. Subd, M.M.T. Loy, P.A. Roland and R. Beigang: Opt. Commun. 37 (1981) 417.
- 35) J.L. Doualan: Opt. Commun. 70 (1989) 225.

- 36) B. Henderson: Opt. Lett. 6 (1981) 437.
37) Yu. L. Gusev, S.N. Konoplin and S.I. Marenikov: Sov. J. Quant. Electr. 7 (1977) 1157.
38) T. Kurobori and N. Takeuchi: Phys. Status Solidi a 83 (1984) K179.
39) L.X. Zheng and L.F. Wan: Opt. Commun. 55 (1985) 277.
40) S.C. Rand and L.G. DeShazer: Opt. Lett. 10 (1985) 481.
41) I. Schneider and S.C. Moss: Opt. Lett. 8 (1983) 7.
42) R. Beigang, G. Litfin and H. Welling: Opt. Commun. 22 (1977) 269.
43) C.R. Pollock, D.A. Jennings, F.R. Peterson, J.S. Wells, R.E. Drullinger, E.C. Beaty and K.M. Evenson: Opt. Lett. 8 (1983) 133.
44) G.C. Bjorklund, L.F. Mollenauer and W.J. Tomlinson: Appl. Phys. Lett. 29 (1976) 116.
45) T. Kurobori, K. Inabe and N. Takeuchi: J. Phys. D 16 (1983) L121.
46) T. Kurobori and N. Takeuchi: Optica Acta 30 (1983) 1363.
47) R.L. Fork, C.H. Brito Cruz, P.C. Becker and C.V. Shank: Opt. Lett. 12 (1986) 483.
48) T. Yajima, K. Yoshihara, C.B. Harris and S. Shionoya (Eds.): *Ultrafast Phenomena VI* (Springer Series in Chemical Physics Vol. 48, Springer-Verlag, Berlin, 1989).
49) T. Kurobori, A. Nebel, R. Beigang and H. Welling: Opt. Commun. in press.
50) R. Beigang, K. Klameth, B. Becker, Z. Yoon and H. Welling: Opt. Commun. 65 (1988) 383.
51) C.P. Ausschnitt and R.K. Jain: Appl. Phys. Lett. 32 (1978) 727.
52) A.M. Johnson and W.M. Simpson: J. Opt. Soc. Am. B 2 (1985) 619.
53) L. Isganitis, M.G. Sceats and K.R. German: Opt. Lett. 5 (1980) 7.
54) L.F. Mollenauer, N.D. Vieira and L. Szeto: Opt. Lett. 7 (1982) 414.
55) J.F. Pinto, C.P. Yakymyshyn and C.R. Pollock: Opt. Lett. 13 (1988) 383.
56) N. Langford, K. Smith and W. Sibbett: Opt. Commun. 64 (1987) 274.
57) N. Langford, K. Smith and W. Sibbett: Opt. Lett. 12 (1987) 903.
58) N. Langford, R.S. Grant, C.I. Johnston, K. Smith and W. Sibbett: Opt. Lett. 14 (1989) 45.
59) P.N. Kean, X. Zhu, D.W. Crust, R.S. Grant, N. Langford and W. Sibbett: Opt. Lett. 14 (1989) 39.
60) J. Mark, L.Y. Liu, K.L. Hall, H.A. Haus and E.P. Ippen: Opt. Lett. 14 (1989) 48.
61) F.M. Mitshe and L.F. Mollenauer: Opt. Lett. 12 (1987) 407.
62) T. Kurobori, N. Shoumura and N. Takeuchi: Opt. Commun. 58 (1986) 409.
63) 黒堀利夫, 庄村伸行, 竹内望: レーザー研究 14 (1986) 638