

# Yb<sup>3+</sup>添加希土類酸化物セラミックモード同期レーザー

量子・物質工学専攻 戸倉川 正樹

## まえがき

Yb<sup>3+</sup>添加希土類酸化物セラミックの特徴を活かした LD 励起モード同期発振の実現、及び単結晶に匹敵する超短パルスセラミックレーザーの実証を目指した。Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックを用いて中心波長 1038nm、パルス幅 188fs、Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックを用いて中心波長 1033nm、パルス幅 357fs、Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミック中心波長 1040nm、Yb:YAG 中心波長 1050nm においてモード同期発振を得る事に成功した。

## 1.背景

近年 Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> レーザーの登場によりサブ 10fs を発生する超短パルスレーザーは実験室レベルでは比較的簡単に得られるようになった。フェムト秒レーザー(以下 fs レーザーと記す)は加工や医療、多光子顕微鏡、周波数標準などへの応用が考えられているが、産業界で実装するためにはコンパクトで高効率な fs レーザーの開発が必要である。Yb は広い吸収スペクトル幅を持ち市販の InGaAs 系の Laser Diode(LD)で直接励起が可能であり 1 μm 付近に広い蛍光スペクトルを持っている。また励起状態吸収が存在せず、量子欠損も少ない。上記理由から Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> レーザーに代わる Yb 添加材料による LD 励起が可能で高出力、高効率かつコンパクトな fs レーザーの研究が世界各地で行われている。

## 2.セラミックの特徴

セラミックと単結晶の性質の違いとしてセラミックは多結晶であり、結晶軸がランダムで、粒界を有しているという事がある。セラミックは単結晶と同じ組成比を持ちマイクロな構造は同じであり、蛍光スペクトルや吸収スペクトルは単結晶とほぼ同じである。しかしマクロにみると多結晶では、粒界の厚さが熱特性、電気特性、機械的特性などの物性に大きな影響を及ぼす事

が知られており、その事からセラミックのそれは単結晶の場合と異なるのではないかと考えられた。しかし我々のナノサイズ微結晶作成技術と真空焼結法を用いて造られたセラミック 10 μm 程度の grain と厚さ数 μm の grain boundary からなっている為、それが与える影響はマクロなものとは大きく異なり、常温において熱伝導率や屈折率などが測定されたがその値は単結晶の値と変わらないものであった。極低温における熱伝導率において単結晶との差異が出たとの報告があるが、フォノンの平均自由行程がグレインサイズを超えたためと考えられる。散乱係数測定や破壊強度測定では単結晶よりも優れているという結果が出ている。また微量の焼結補助材の SiO<sub>2</sub> や添加活性化イオンが粒界に偏析しているか調べるために蛍光分析をした結果、添加活性化イオンについては粒界部における偏析は見られていない。

## 3.希土類酸化物の特徴

希土類酸化物(Re<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Re=Y, Lu, Sc)は代表的レーザー媒質である YAG と比べ高い熱伝導率(10~15W/mK)を有しているが、非常に高い融点(>2400 K)を持つ為に既存の単結晶作製技術では作製が困難であった。我々はナノサイズ微結晶作製技術と真空焼結技術により高品質な希土類酸化物セラミックを作製する事に成功している。

希土類酸化物はYAGと比べカチオン密度が高く、結晶場の影響が出やすく蛍光スペクトル幅が広がりやすい。蛍光スペクトルの半値全幅から  $Sech^2$  型の変換限界パルス計算すると Yb:YAG ではパルス幅 150fs 程度であるのに対し希土類酸化物、特に Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ではパルス幅 74fs 程度まで発生可能である。また非線形屈折率も YAG と比べ 2 倍程度高く自己位相変調によるスペクトル広がり、カーレンズ効果が起きやすくなっている。またサブ 100fs が得られるような他の Yb 添加材料と比べて熱伝導率が 2~3 倍高く高出力化が可能である。

#### 4. Yb イオンの特徴

Yb<sup>3+</sup> のエネルギー準位と Nd<sup>3+</sup> のエネルギー準位を図 1 に示す。図から分かるように Nd は多数の準位を持ち基底状態 I<sub>9/2</sub> からの吸収だけでなく、励起状態 F<sub>3/2</sub> の状態でも吸収を持つ、このような吸収を励起状態吸収 (excited state absorption 以下 ESA と示す) と呼ぶ。ESA により励起された電子が放射緩和すると (up conversion) 可視域の光が放出される一方 Yb<sup>3+</sup> は準位が二つしか存在しなく、ESA が存在しない為に LD 励起時には高い吸収量子効率を得られる。またシュタルク効果により分裂した準位間を利用しレーザー発振が行われる為、励起波長と発振波長が近く量子欠損 (quantum defect) が非常に小さい。

Yb のスペクトルは結晶場の影響を受けやすい、格子定数の影響を比べる為にイオン半径を示す

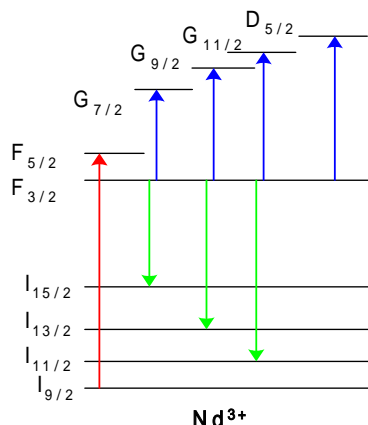


図 1 Nd、Yb イオンエネルギー準位図

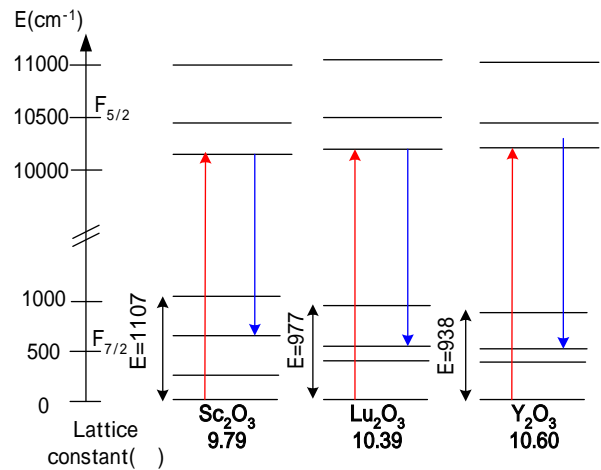
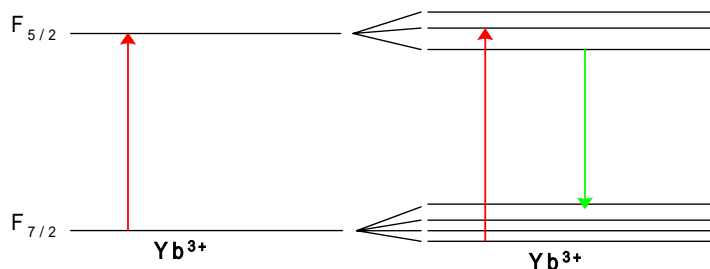


図 2 希土類酸化物中での Yb イオンのエネルギー準位図

#### 5. 分光結果

Yb イオンの分光結果から下記式を用いて吸収断面積、放出断面積を求めた。

吸収係数  $\alpha(\nu)$  と吸収断面積  $\sigma_a(\nu)$  は単位体積あたりの添加イオン数を  $N$  として

$$\sigma_a(\nu) = \frac{\alpha(\nu)}{N}$$

これより吸収係数から吸収断面積を求めた。

放出断面積

$$\frac{1}{\tau} = \sum_K A(I, K)$$

上準位寿命の逆数は上準位からの緩和確率の和である。ただし非放射過程による緩和は無いと仮定している。

$$\beta(I, K) = \tau A(I, K) \quad \beta: \text{branching ratio}$$

は緩和する準位の比であり、Yb では 2 準位しか無い為 1 とできる。  
放出断面積 は以下式で表せる。

$$\sigma(I, K; \nu) = \frac{\lambda^2}{8\pi c n^2} A(I, K) g(\nu)$$

$$g(\nu) = \frac{I(\nu)}{\int I(\nu) d\nu} \cdot \text{ラインシェイプ関数}$$

以上から

$$\sigma(I, K; \nu) = \frac{\lambda^2}{8\pi c n^2} \frac{\beta(I, K)}{\tau} \frac{I(\nu)}{\int I(\nu) d\nu}$$

空間に直すと

$$\sigma(I, K; \lambda) = \frac{\lambda^4}{8\pi c n^2} \frac{\beta(I, K)}{\tau} \frac{I(\lambda)}{\int I(\lambda) d\lambda}$$

上式より蛍光スペクトルと上準位寿命から断面積を導出した。

Yb は  $\text{Re}_2\text{O}_3$  中では発光に寄与しない可能性のある  $\text{C}_2$  対象性を持つものと発光に寄与するとされている  $\text{C}_{3i}$  対象性を持つ二つの置換サイトを有しており、置換の割合が分かっていない。そのため吸収断面積を決めるにあたっては 30% 近くの誤差を含んでしまう。放出断面積においては上準位寿命より導き出している為に、それほどの誤差はないと考えられる。

得られた吸収断面積を図 3 に、放出断面積を図 4 に示す。図 2 で見たように結晶場の影響から各希土類酸化物で僅かにピークの位置がずれている事が分かる。

吸収断面積では 976nm と 950nm に鋭いピーク

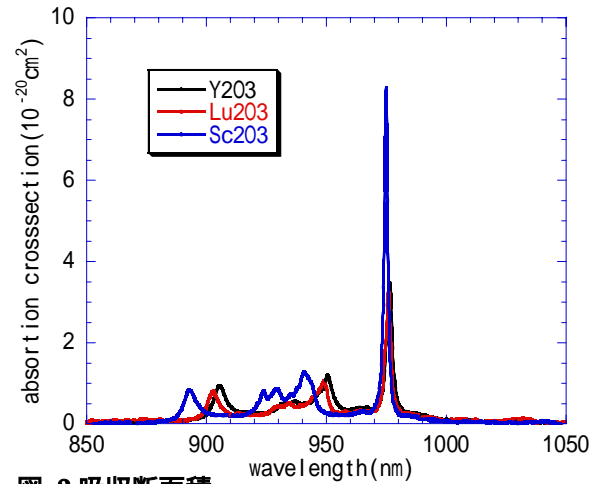


図 3 吸収断面積

が確認できる。976nm の断面積は 950nm の断面

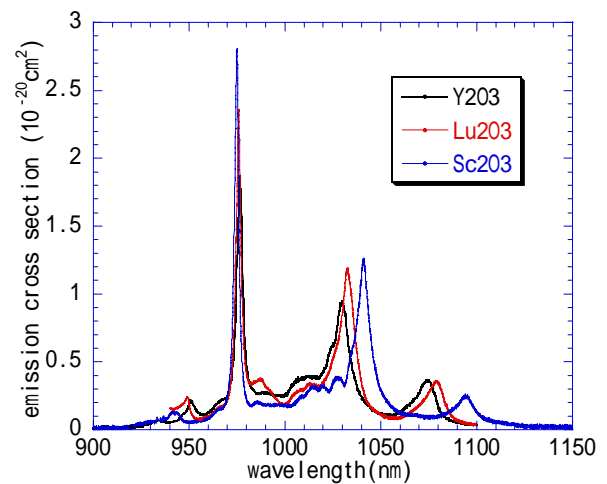


図 4 放出断面積

積の 3~5 倍ある。

放出断面積は 976nm と 1030nm と 1080nm 付近にピークを持つ事が分かる。976nm のピークは吸収線と重なりを持つ為通常は発振が抑制される。1030nm のピークも僅かながら再吸収を持つ為に、試料の濃度や共振器 Q 値によって発振波長

表 1 希土類酸化物特性一覧

Material	Abs.	FWHM	Cross section (10 <sup>-20</sup> cm <sup>2</sup> )	Emi.	FWHM	Cross section (10 <sup>-20</sup> cm <sup>2</sup> )	Thermal conductivity (W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	n	n <sub>2</sub> 10 <sup>-13</sup> esu
Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ceramic	976	2.9	3.1	1031	11	1.15	12.5 (crystal)	1.93	3.96 ±
	949		1.0	1078	14	0.36			
Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ceramic	975	1.7	8.5	1041	10	1.2	16.5 (crystal)	2.01	5.33 ±
	940		1.3	1095	14	0.25			
Yb:Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ceramic	977	3.1	3.5	1031	15	0.95	17	1.92	5.79 ±
	950		1.2	1076	16	0.36			

1030nm 付近か 1080nm 付近が決まる。  
再吸収の影響を見積もる為に、8at.% 1.5mm Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いた小信号利得の励起光強度依存性の数値計算結果を図 5 に示す。

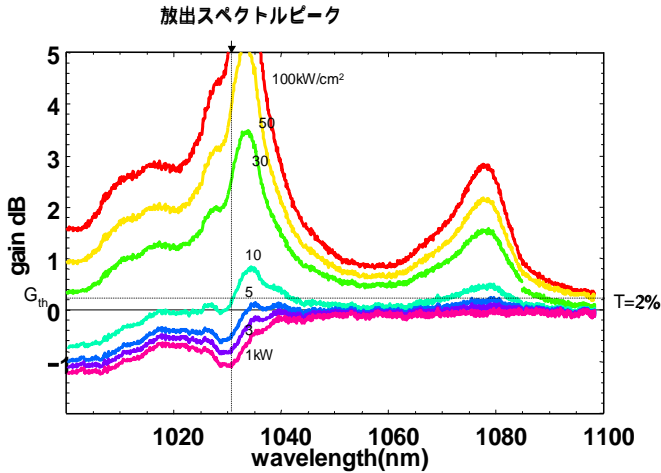


図 5 小信号利得帯域の変動

図から分かるように再吸収の影響から利得のピークが放出断面積のピークよりも長波長側へシフトしている事わかる。

### 5.実験内容

実験図を図 6 に示す。Z 型共振器を用いており、ミラーと試料の斜入射で収差が補正されるように設計している。試料は 8at.% 1.5mm Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、1.8at.% 1mm Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 3at.% 1mm Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックスを用いておりプリュースター角で配置した。励起光源はブロードストライプ LD (4W、1×100 μm)、波長は 8at.% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では 950nm、その他の試料では 976nm を用い、4 枚のレンズを用いて試料上で約 30×100 μm に集光した。分散補

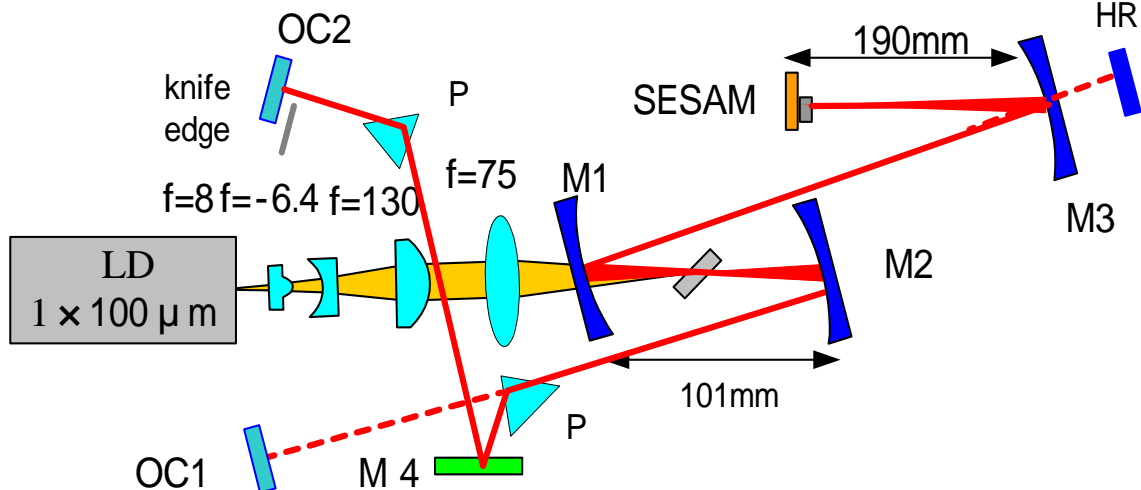


図 6 モード同期発振実験図

償にはプリュースターカット SF10 プリズム対 (48cm tip-to-tip length) とチャープ鏡(M4 中心波長 1030nm -900fs<sup>2</sup>)、変調素子には半導体過飽和吸収体ミラー (SESAM 中心波長 1045nm 変調深さ 2%) を用いており、曲率半径 400mm のミラー (M3) で集光した。出力鏡には裏面反射の影響を防ぐ為に 30 分のウエッジをつけた。8at.% Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> モード同期実験時はナイフエッジを使用して波長選択を行った。以下に結果を示していく。

### 8at.% 1.5mm Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

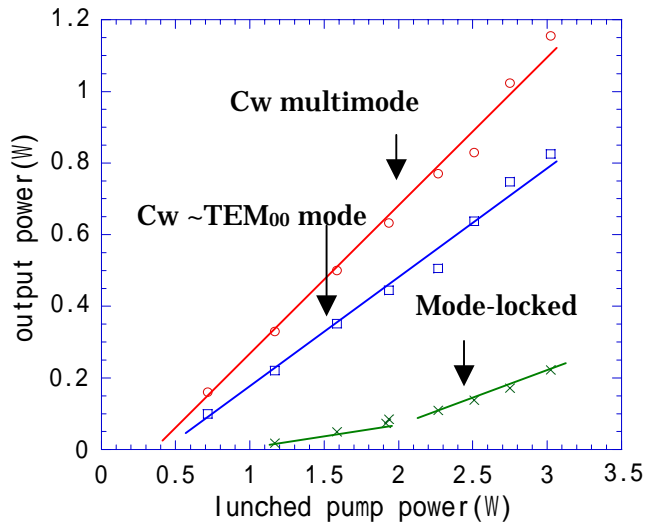


図 7 8at.% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 出力特性 multimode, TEM<sub>00</sub> mode は実験図点線で示された cw 発振時のデータ

始めにプリズム対、SESAM を用いずに図 6 点線で示された共振器で cw 発振を行った。T=5 出力鏡を用い最大励起パワー 3W 時にマルチモードで 1.15W、TEM<sub>00</sub> モードで 830mW を得た。次にモード同期実験を行った。

透過率 2%出力鏡を用い励起パワー 3W 時、sech<sup>2</sup>

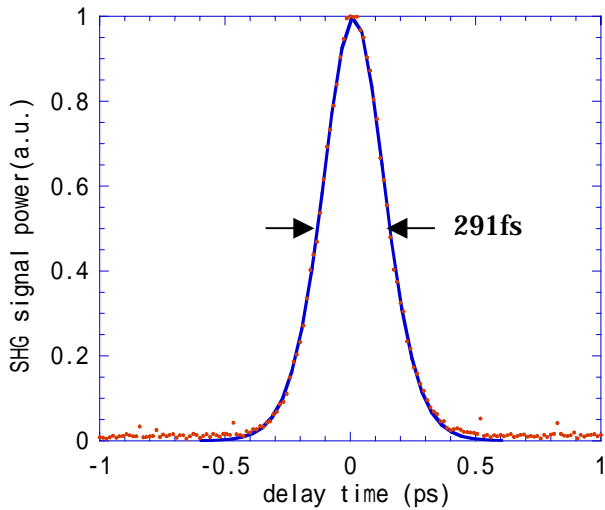


図 8 強度自己相関波形

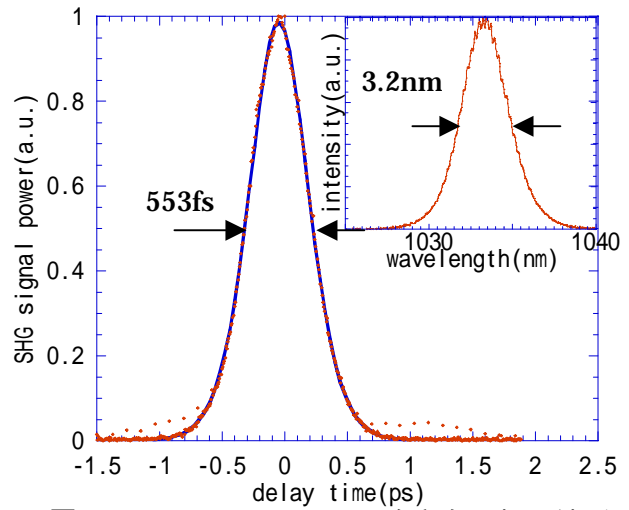


図 11 3at% 1mm Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 強度自己相関波形 inset 発振スペクトル (T=5%)

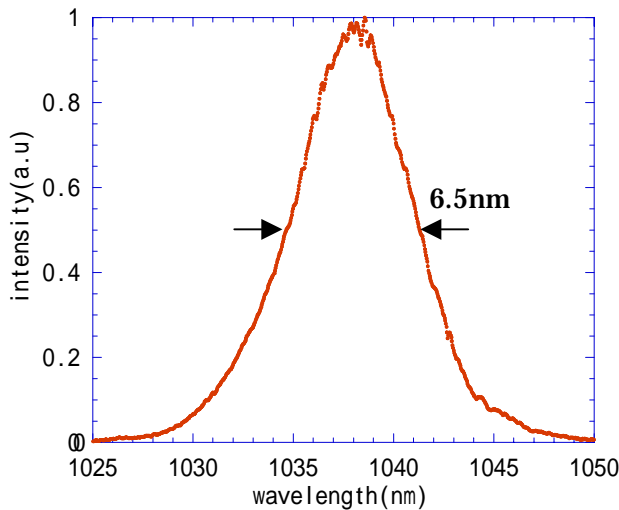


図 9 発振スペクトル

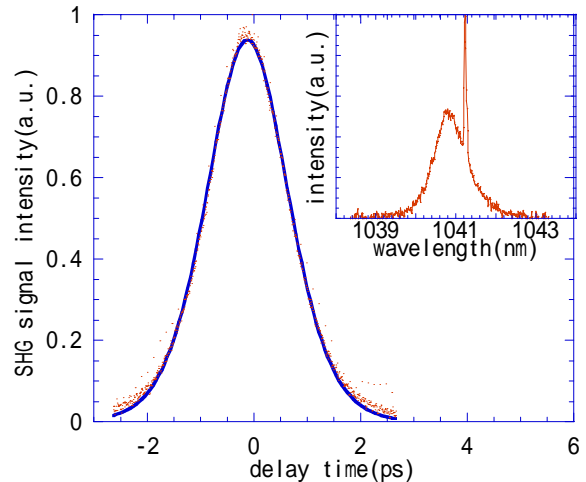


図 12 2.5at% 1mm Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 強度自己相関波形 inset 発振スペクトル (T=5%)

型パルスを仮定しパルス幅 188fs スペクトル幅 6.5nm、出力 220mW、97MHz、中心波長 1038nm を得た。以下に他希土類酸化物の結果を列挙する。

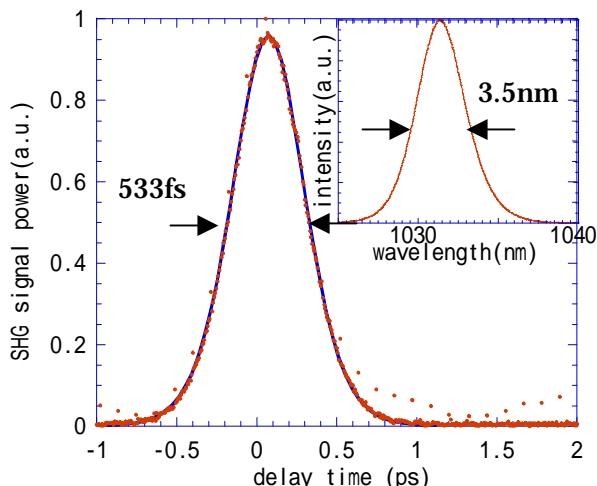


図 10 4at% 1mm Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 強度自己相関波形 inset 発振スペクトル (T=2%)

以上データの詳細、透過率の異なる出力鏡を用いた時の結果も併せて次ページ表 2 でまとめる。そのまえに実験中にパルスの分裂により (利得がないから分裂する) パルス幅が制限された事に対する、考察を載せる。

ソリトンの条件式は下記式で表される。

$$\tau_{\text{soliton}} = \frac{1.76\lambda A_{\text{eff},L} |D_2|}{\pi n_2 L E_p}$$

：発振波長 A : 非線型媒質内ビーム面積

D<sub>2</sub> : 共振器内負分散 n<sub>2</sub> : 非線型屈折率

E<sub>p</sub> : パルスエネルギー L : 結晶長

式から分かるように D<sub>2</sub> 小さくするかパルスエネルギーを大きくする事によってソリトン条件を満たすパルス幅は狭くなる。しかし狭いパルスを

を得る為にはそれに対応する広いスペクトルが必要となってくる。しかしスペクトルが広がると利得媒質の利得のすその部分まで必要となってくる。すその部分は利得が小さい為利得の中心部分で発振する場合に比べて全体の利得が低下する。パルスが分裂し1パルスあたりのエネルギーを下がりパルス幅が広がる事により、利得の中心部分だけで発振する事が可能となる為、全体の利得が上がる。その為パルスの分裂後の方が利得が高くなる可能性を考えている。本研究では分裂したパルスがSESAMの緩和時間内存在していた為SESAMによる損失も1パルス時と変わっていない。

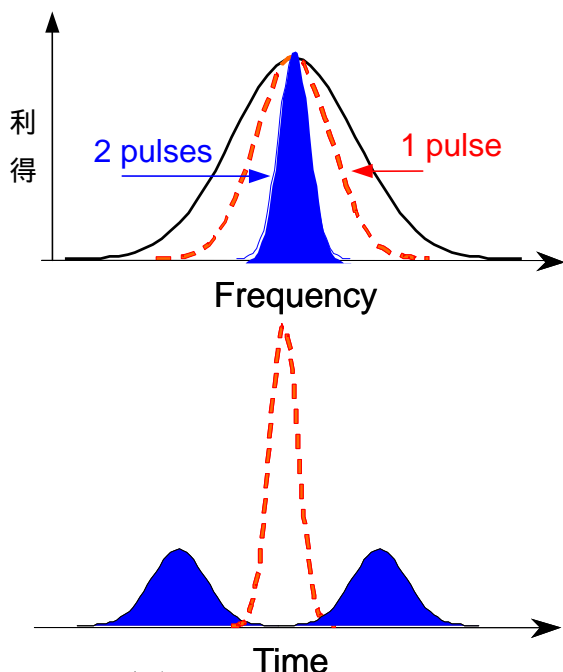


図 13 ダブルパルスと利得帯域の関係

ない。Cw 発振からモード同期発振への移行時出力の 5~10mW 増加が確認できたが、ダブルパルス移行時にも同様に 5~10mW 増加が確認できた。

## 6.まとめと考察、今後の展望

表 2 に示すような結果を得る事ができた。出力はもっとも短いシングルパルスの時の値を示している。

Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> において高濃度試料のパルスの方が短くなっている事について考察すると、再吸収による損失から発振波長が利得の放出スペクトルのピークからシフトした事により実効的半値全幅が増加した為と考えている。

Yb 添加希土類酸化物及びセラミックレーザーにおいて最短のパルス発生に成功した。この結果によりセラミックレーザーでも十分に短い超短パルスの発生が可能である事が証明できたと思っている。この結果から複数種の Yb 添加希土類酸化物セラミックを組み合わせた(例えば Y と Sc)複合セラミックモード同期レーザーがいつそ現実的なものとなったと考える。またカーレンズモード同期によるよりいっそうの単パルスかも早急に進めるべきテーマと考えている。

以上内容についてより詳しく知りたい場合はレーザー研に所蔵の修士論文を参考されたし。電気通信大学図書館所蔵品はできれば差し替えたい代物なので参考にしない方が賢明と考える。

表 2 Yb 添加希土類酸化物セラミックスモード同期レーザー発振 結果一覧

	t (fs)	Output power (mW)	Wavelength (nm)	Slope efficiency	Rep. Rate (MHz)
8at.% 1.5mm Yb:Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	188	220 (T=2%)	1038	14%	97
1.8at.% 1.5mm Yb:Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	344 390 450	77 (T=2%) 30(T=1%) 154(T=5%)	1031	16%	97
3at.% 1mm Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	357	357 (T=5%)	103.5	35%	97
2.5at% 1mm Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.2ps	80 (T=5%)	1041		97