

Yb 添加セラミック新材料を用いた 高出力超短パルスレーザーの研究

白川(晃) 研究室 1433028 北島 将太郎

1. 序論

モード同期により実現される超短パルスレーザーは、極めて短いパルス幅と高いピーク強度を持ち、難加工材料の加工や非線形分光、更には基礎物理学分野など現在幅広く利用され、更なる研究がなされている。特に固体利得媒質を用いたモード同期レーザーは、その優れた特性より現段階で最も高い出力と短いパルス幅を簡単に両立できる光源として積極的に研究が進められている。本研究室では優れた特性を持つ様々なセラミック新材料を企業との共同研究にて開発し、その特性評価・レーザー発振実験を行うことで既存のレーザーを上回る超短パルスレーザーの開発を目指している。セラミックレーザー媒質は現在広く用いられている単結晶媒質と比べた際、機械的強度の向上、高濃度添加時の均一性、大口径試料の作成が可能など、特に高出力レーザーのために有利な特性を兼ね揃えており、またガラスレーザーと比べて熱伝導率が圧倒的に優れている。以上のような特性よりセラミックレーザーは高強度レーザーの媒質として既存のガラス、単結晶媒質に代わる新しい固体利得媒質になると期待されている。

本研究では特に超短パルスレーザー用の利得媒質として優れた特性を持つ 2 種類のセラミック材料である、 $\text{Yb}^{3+}:\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ($\text{Yb}:\text{LuAG}$) セラミックと $\text{Yb}^{3+}:\text{CaF}_2\text{-LaF}_3$ セラミックの、熱的、光学的特性評価と CW (連続波) レーザー発振実験とモード同期超短パルスレーザー発振実験を行った。

2. 原理

2.1. モード同期レーザー

レーザー共振器の縦モードの共振周波数は共振器長に応じた間隔 ($c/2L$) で等間隔に並ぶ。しかし実際にはこれらの縦モード間の間隔は共振器中の分散や非線形効果などにより完全に等間隔ではなく、またそれらの相対的な位相関係もランダムになる場合が多い。この結果、それらの合成として得られる出力はパルスを形成せず雑音のようになってしまう。そこで共振器中に縦モード間隔 $c/2L$ に等しい周波数の損失や利得の変調を加えると、各縦モードに対して $\pm c/2L$ のサイドバンドが発生し、それらの間でエネルギーの引き込みが生じることで縦モード間の位相関係と周波数間隔が一致する。これをモード同期

といい、このとき時間領域での電界の包絡線は非常に急峻なパルスを形成することとなる。モード同期により得られるパルスは ps(10^{-12} 秒)から fs(10^{-15} 秒)ほどと非常に短いパルス幅を持つ。

モード同期を実現するための変調を与える素子として、代表的なものに半導体可飽和吸収鏡 (Semiconductor Saturable Absorber Mirror, SESAM) がある。SESAM は飽和フルエンスを超える強い光に対しては高い反射率を、弱い光に対しては低い反射率を示す特性を持ち、それにより共振器中に損失変調を与える。SESAM の欠点として、設計によって変調深さを大きくすると、それに伴い非飽和吸収損失も大きくなってしまふという点がある。よって SESAM を用いたモード同期レーザーは現実的にはあまり深い変調を与えることが出来ず、結果としてパルス幅と出力の双方に制約が与えられる。それに対し別の原理を用いたモード同期法であるカーレンズモード同期 (以下 KLM) はより深い変調を共振器に与えることができる。

KLM とは非線形媒質中においてカーレンズ効果により起こる光の自己収束効果を利用してモード同期を実現する手法である。十分に強度の高い光がある媒質に入射した場合、その屈折率は

$$n = n_0 + n_2 I$$

と表される。 n_2 は非線形屈折率であり、屈折率 n は光の強度 I に比例して変化することがわかる。これを光カー効果という。高強度のガウシアンビームが媒質に入射するとこの光カー効果によって媒質の屈折率はレンズ状の分布になり、それにより光は自己収束し、共振器中のビーム系に強度に応じた変化が現れるようになる。KLM には共振器中にピンホールやスリットを挿入するハードアパーチャー KLM と、利得媒質中の励起光のビーム径とレーザーのビーム径を一致させることによりそれが仮想的なピンホールとして作用するソフトアパーチャー KLM と呼ばれる 2 種類の方法がある。図 1 にそれぞれの概念図を示す。SESAM-ML と比べた時の KLM のメリットとして①変調が深く、レスポンスが速い、②非飽和吸収損失がない、③ダメージへの耐性が非常に高い、という点が挙げられ、これにより SESAM で

は実現できない高出力、短パルス化が実現可能である。

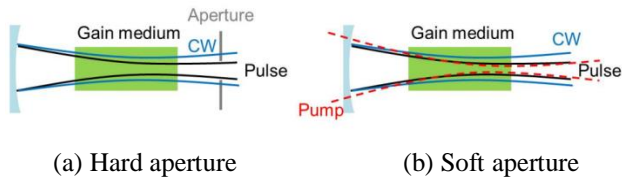


図 1. KLM の概念図

2.2. 超短パルスレーザー用媒質に要求される

特性

モード同期を用いた超短パルスレーザー発振器・増幅器に求められる特性として最も重要なのが、蛍光スペクトルの半値全幅である。モード同期レーザーによって得られる最短のパルス幅は蛍光スペクトルの帯域と共振器の線形損失、非線形損失（変調深さ）によって決まるため、より短いパルスを得るためにはより広帯域な蛍光幅が必要となる。しかし実際のレーザーにおいては蛍光スペクトルの幅がそのままパルス幅に対応することは少なく、KLMのような大きな変調深さを生み出す手法を用いることで蛍光スペクトルにより定められる限界を超えた短パルス化が可能である。また、高効率化の観点からは蛍光スペクトルの絶対値であるレーザー発振波長での誘導放出断面積の値も合わせて重要である。また、高出力化、高効率化の為に重要となってくるのが媒質の熱伝導率である。前述のとおりレーザーは発振時に常に熱を生じるため、その効率的な排熱のためにはレーザー媒質が高い熱伝導率を持っていることが重要になってくる。

3. Yb:LuAG セラミックレーザー

3.1. Yb:LuAG セラミックの特性

LuAG (Lutetium Aluminum Garnet) は、レーザー媒質として一般的である YAG (Yttrium Aluminum Garnet) の Y (イットリウム) を Lu (ルテチウム) で置き換えた結晶であり、YAG と同様のガーネット構造を持つ。YAG 等の一般的なレーザー媒質では、通常イオンの添加濃度の増加に伴い急激に熱伝導率が低下するという問題がある。これは置換される母材のイオンと添加される希土類イオンの原子量が異なるため、希土類イオンが欠陥として作用し、フォノンの平均自由行程が下がってしまうためにおきる。熱伝導率の低下の度合いは、原子量が違うほど顕著である。図 2 に Yb:YAG と Yb:LuAG の単結晶、Yb:LuAG のセラミックの熱伝導率の添加濃度依存性を示す。単結晶のデータは参考文献[1]より、セラミ

ックの値は今回本研究にて測定した値である。

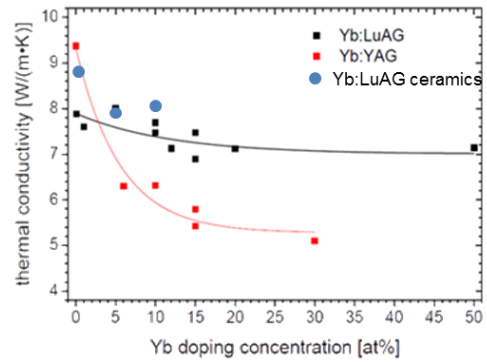


図 2. Yb:YAG、Yb:LuAG、Yb:LuAG セラミックの熱伝導率の添加濃度依存性[1]

Yb:YAG の場合では Yb³⁺(173 g/mol) は Y³⁺ (89 g/mol) と置換される。原子量の違いは大きく、熱伝導率は添加濃度の増加とともに急激に減少する。それに対し、Yb:LuAG では Lu³⁺ (175 g/mol) と置換される。原子量は非常に近いため、高濃度添加時 (> 2-3%) においても熱伝導率の低下はわずかである。またこの特性は Yb:LuAG セラミックにおいても同様の結果が得られている。これより Yb:LuAG は高濃度添加と高い熱伝導率の両立ができる、高効率・高出力なレーザーに向けた材料であるといえる。

図 3 に Yb:LuAG セラミックの吸収・蛍光断面積を示す。

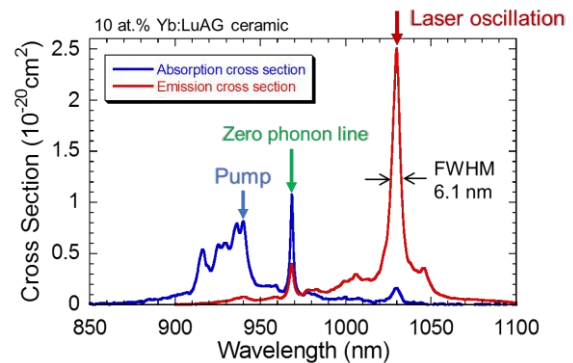


図 3. Yb:LuAG の吸収・蛍光断面積[2]

蛍光スペクトルの主要なピークは 1030 nm ($\sigma_{emi} = 2.5 \times 10^{-20}(\text{cm}^2)$) にあり、1046 nmにも小さなピークが存在する。1030 nm ピークの半値全幅は 6.1 nm で YAG(10 nm)と比べて小さい。1046 nm 付近での発振は誘導放出断面積が小さい分効率という点においては 1030 nm 付近の発振に劣るが、その一方で LuAG のスペクトル幅の狭さに制限の受けない短パルス化を実現できる可能性がある。Yb:LuAG セラミックの蛍光寿命はそれぞれ 5at.%で 1.01 ms、10at.%で 1.02 ms であった。

これまで Yb:LuAG セラミック、単結晶を用いた SESAM (半導体可飽和吸収鏡)モード同期が報告されてきた[2-4]。さらなる短パルス化と高出力化のためには SESAM と比べてより深い利得幅が得られる Kerr レンズモード同期が必須である。本研究では Yb:LuAG セラミックを媒質として用いた KLM を初めて実現した。

3.2. Yb:LuAG セラミック KLM 発振実験

Yb:LuAG セラミックを媒質とした Kerr レンズモード同期実験を行った。図 4 に実験系を示す。

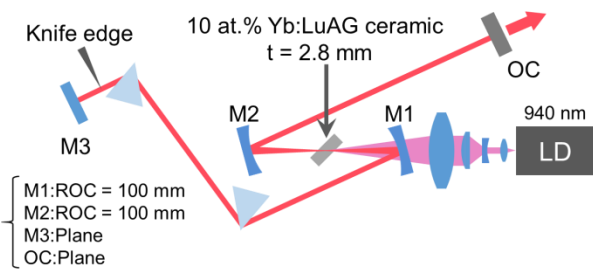


図 4. Yb:LuAG セラミック KLM 発振実験系

本研究では Z 型共振器を採用し、利得媒質として厚さ 2.82 mm の 10 at.% Yb:LuAG セラミックをブリュスター角で配置した。分散補償にはプリズム対を使用した。励起光源には中心波長 940 nm のブロードストライプレーザーダイオード(LD)を用いた。LD から放出された励起光は 3 つのレンズによりコリメートされ、 $f=70\text{mm}$ のレンズにより媒質中に集光される。スポットでのビーム径は縦 $20\mu\text{m}$ × 横 $80\mu\text{m}$ 程であった。モード同期の最適な条件を見定めるためにプリズム間距離の調整により GDD を共振器一往復で約 -6000 fs^2 から -11000 fs^2 まで変化させながら分散補償を行った。同様に出力結合鏡 (OC) には透過率 3% から 10% までの四種類を用いた。エンドミラー M3 の近傍には発振波長の制御のためにナイフエッジを挿入した。KLM は励起光のソフトアパーチャ効果により実現した。

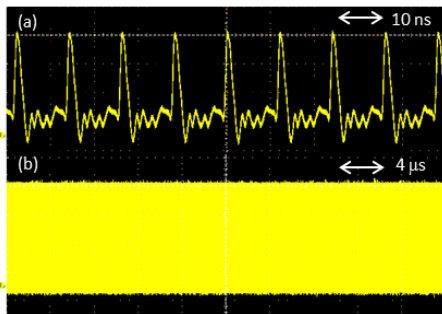


図 5. OC5%、GDD 約 -7000 fs^2 時のパルストレイン

全ての GDD、OC の組み合わせの中で最も短いパルス幅が得られたのが OC5%、GDD 共振器一往復で

約 -7000 fs^2 、励起パワー 9.5 W の場合であった。このとき平均出力は 1.72 W 、光-光変換効率は 18.1% であった。図 5 にオシロスコープにて観測したその条件でのパルストレインを示す。(a) が 10 ns/div 、(b) が $4\mu\text{s/div}$ である。見ての通り変調のない、パルスの振幅の揃った安定な CW モード同期が実現できている。オシロスコープで計測した繰り返し周波数は 84 MHz であった。

図 6 に発振スペクトルと第二高調波(SHG)自己相関波形を示す。 sech^2 でフィッティングしたときのパルス幅は 103 fs であった。スペクトルの半値全幅は 12.1 nm 、中心波長は約 1049 nm であった。時間帯域幅積は 0.342 であった。

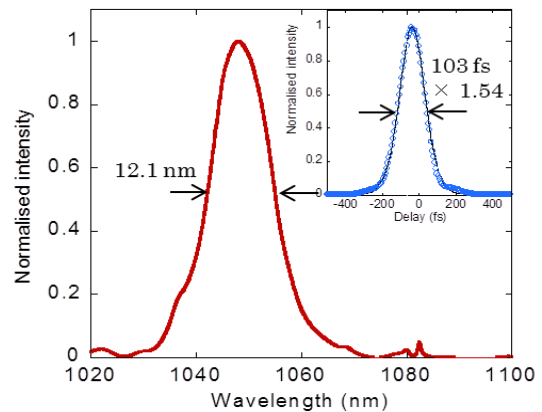


図 6. OC5%、GDD 約 -7000 fs^2 時の自己相関波形、発振スペクトル

発振波長が長波長側にシフトしていることと、KLM による深い変調幅の作用で、蛍光スペクトルの半値全幅に制限されない発振スペクトルの広がり短パルス化を実現している。発振スペクトルの両肩に見られる小さなピークはモード同期レーザーに特有の Kelly サイドバンドだと考えられる。Kelly サイドバンドとは準ソリトン波特有の現象であり、パルスが通過する際に共振器中の分散と利得が周期的に変動することにより生じる現象である。

図 7 に RF スペクトルを示す。

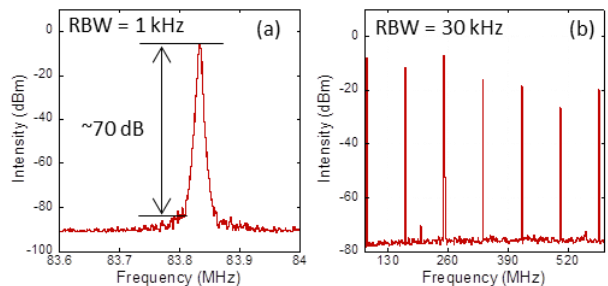


図 7. OC5%、GDD 約 -7000 fs^2 時の RF スペクトル (a) RBW 1 kHz, (b) RBW 30 kHz

RF スペクトルはフォトダイオードにて光から電気に変換されたパルス信号を RF スペクトルアナライザにて計測した。これにより Q スイッチモード同期やマルチパルスが生じてないことを確認できる。(a)は RBW(Resolution bandwidth) 1 kHz で計測した基本波ビート成分であり、70dBc 以上の消光比が得られた。基本波ビート成分とその倍数の成分以外が確認できないことより、安定したシングルパルスモード同期が実現されていることがわかる。以上より計算されるパルスエネルギーは 20.3 nJ、尖頭出力は 198 kW である。

また OC の透過率 7.5%、GDD -11000 fs²、励起パワー 9.5 W のとき中心波長 1034 nm にて平均出力 2.20 W、光-光変換効率 23.2% の KLM を実現した。この時パルス幅は 198 fs、スペクトルの半値全幅は 7.1 nm であった。KLM の深い変調幅により 1030 nm 付近でも SESAM モード同期と比べて広いスペクトルが得られていることが分かる。図 8 は上記 2 つの条件での発振スペクトルの違いを示している。OC の透過率 7.5% の場合 (オレンジ実線) の方が 5% の場合 (紫実線) に比べて蛍光スペクトル (赤破線) にピークの位置が近いことが分かる。これにより透過率 7.5% の OC のほうが実効利得が高くなったことが、高い変換効率を得られた理由であると考えられる。

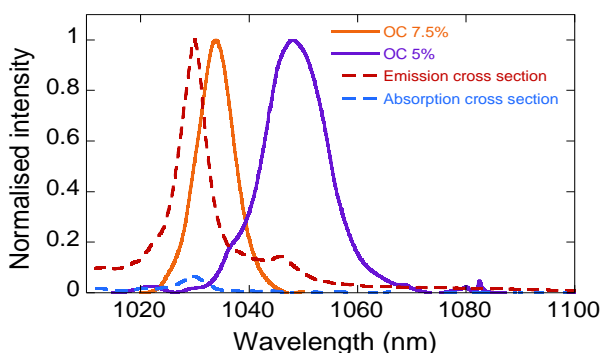


図 8. 二つの条件における発振スペクトル

4. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックレーザー

4.1. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの特性

Yb:CaF₂ の最も大きな特徴としてその広く滑らかな蛍光スペクトルが挙げられる。Yb:CaF₂ の蛍光スペクトルには半値全幅で約 70nm の幅があり、波長可変発振実験では 1000 nm~1080 nm 以上の広帯域な波長可変が報告されている[5]。上述のとおり蛍光スペクトルの幅はモード同期レーザーにおいて短いパルス幅を得るために非常に重要となってくるため、Yb:CaF₂ は Yb:CALGO と並び、現在最も短いパルス幅と高い出力の両立を出来る媒質と考えられている。このように Yb:CaF₂ は有望な特性を有しているため、

それをセラミック化することにより機械特性を向上させ、さらなる幅広い応用に活かそうという研究がなされている。表 1 にこれまでの Yb:CaF₂ セラミックレーザーの報告をまとめる。

表 1. Yb:CaF₂ セラミックレーザーの報告

	[6](2013)	[7](2013)	[8](2015)
最大出力	1.09 W	1.2 W	1.6 W
スロープ効率	35.3%	35%	42.7%
添加濃度	3 at. %	5 at. %	4.5 at. %
試料作製法	HIP	Hot-forming	New method

表左[6]の報告は我々が行ったものである。我々の研究室では株式会社ニコンとの共同研究において Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの開発を行ってきた。全てのグループはそれぞれ別の試料作製法にて透光性フッ化カルシウムセラミックを得ている。我々の試料作製法は熱間等法圧加圧法(Hot isostatic press, HIP 法)と呼ばれる方法に基づいている。本研究では Yb イオンの他に少量の La イオンを共添加することにより二価の Yb イオン(Yb²⁺)の生成を防いでいる。二価の Yb イオンは 400 nm~200 nm 付近に吸収を持つため、十分に生成を抑制されていないセラミックは肉眼で見て黄色に近い半透明な外見を有する。また Yb²⁺は当然の事ながらレーザー発振には寄与せず、実効的なイオンの添加濃度が下がることより、レーザー発振効率を低下させることが知られているため、これを防ぐことはレーザー媒質にとって重要である。しかし La イオンの共添加により Yb²⁺の生成が防がれる機構については未だ解明されていない。

図 9 に光スペクトルアナライザにて測定した Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの蛍光スペクトルを示す。

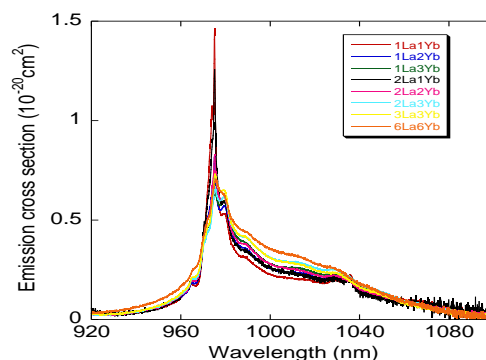


図 9. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの蛍光スペクトル

測定は粉末化した試料をスライドガラスにはさみ、中心波長 910 nm のレーザーにて励起し、その蛍光を分光することで行った。誘導放出断面積の算出にはそれぞれの蛍光寿命を測定し、それを用いた。

ピーク付近の形状より、1%La1%Yb から Yb イオンの添加濃度の上昇によりスペクトルがブロードに変化していくことが分かる。特に 1%から 2%への変化は劇的であり、添加濃度に依存した何らかの Yb イオンの状態の変化が考えられる。La イオンの添加濃度の変化によるスペクトル形状の変化は 1%La1%Yb と 2%La1%Yb の間では例外的にやや大きいものの、それ以外の場合では非常に弱いことが分かる。

図 10 に測定した Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの吸収スペクトルを示す。吸収断面積は白色光源を試料に特化させ、その透過スペクトルより算出した。

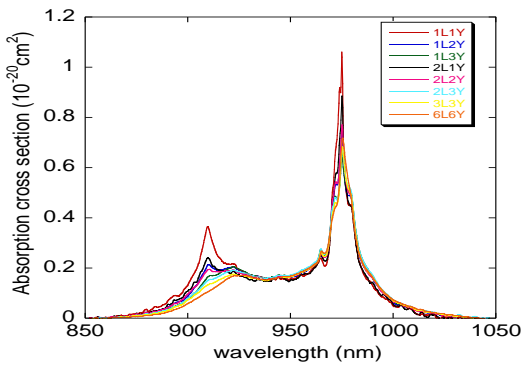


図 10. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの吸収スペクトル

蛍光スペクトルと同様にその Yb イオンの添加濃度の上昇とともにスペクトル形状が広帯域に変化することが分かる。また低添加濃度では強く現れている 920 nm 付近のピークが添加濃度の上昇とともに弱くなる傾向も分かる。

表 2 に光スペアナにて測定した Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの蛍光寿命を示す。両方のイオンの添加濃度の上昇とともに 2.2 ms から 2.0 ms まで蛍光寿命がゆるやかに低下することが分かった。これはレーザー媒質において一般的な蛍光寿命の振る舞いである。単結晶の蛍光寿命 2.4 ms と比べるとやや小さいことが分かる。

表 2. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの蛍光寿命

		Yb (at.%)		
		1	2	3
La (at.%)	1	2.2 ms	2.2 ms	2.1 ms
	2	2.1 ms	2.1 ms	2.0 ms
	3	-	-	2.0 ms

6%La6%Yb: 1.7 ms

4.2. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックレーザーCW 発振実験

図 11 に Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックレーザーCW 発振

実験の実験系を示す。

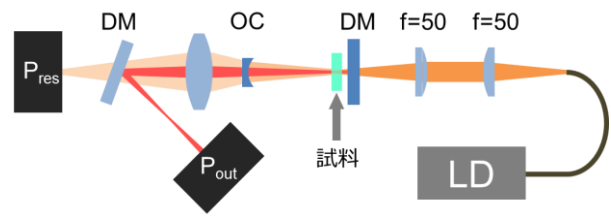


図 11. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックレーザーCW 発振実験系

共振器は 2 枚のミラーに利得媒質を挟んだ構成であり、励起光源には IPG Photonics 社製、最大出力 30W の 975 nm VBG ロックファイバー結合型 LD を用いた。ファイバーのコア径は 105 μm であり、それを 50 mm のレンズ 2 枚を用いて結晶中に集光している。集光系は概ね 100 μm×100 μm であった。レーザー出力を測定すると同時に残留励起光 P_{res} を測定することにより発振中の媒質での吸収パワーを推定した。

図 12 に 5%OC を用いた際の対吸収パワー、対入射パワーそれぞれの全ての試料の入出力特性を示す。

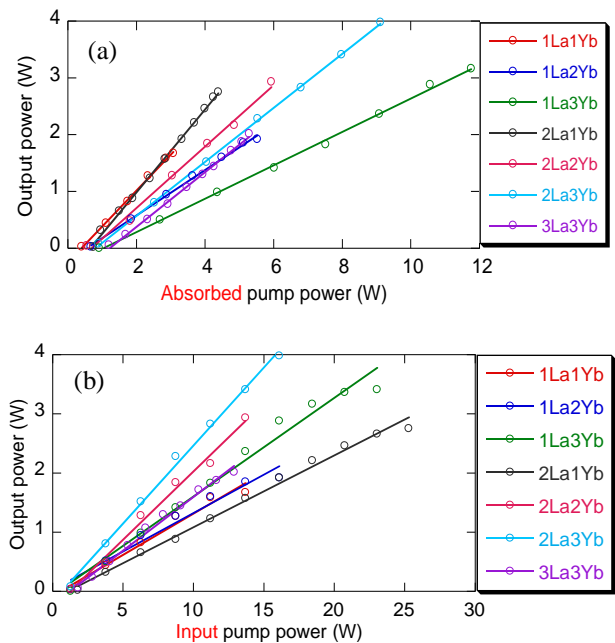


図 12. Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックの入出力特性

(a) 対吸収パワー、(b) 対入射パワー

対吸収パワーでは 2%La1%Yb (図中黒色の線)、対入射パワーでは 2%La3%Yb (図中水色の線) が最もいい効率であることが分かる。最大出力は 2%La3%Yb の試料で測定した 3.97 W であった。それぞれの試料で最大励起パワーが異なるのは、実験時に熱破壊の前兆が見て取れた際、若しくは熱破壊が生じた際にそれ以上の励起を中止しているためである。

る。熱破壊はイオンの添加濃度の合計が大きいほど発生しやすく、特に 6%La6%Yb の試料においてはレーザー発振は確認したものの、熱破壊があまりに起きやすかったため、レーザー発振実験の対象外とした。

表 3 に全ての試料の対吸収パワーのスロープ効率を示す。

表 3. 全ての試料のスロープ効率

		Yb (at.%)		
		1	2	3
La (at.%)	1	63.2%	39.9%	27.7%
	2	73.1%	54.0%	47.5%
	3	-	-	48.1%

表 3 より、Yb イオンの添加濃度が上昇すると対吸収光のスロープ効率が減少することが見て取れるが、吸収効率は Yb イオンの添加濃度に比例して上昇するため、対入力パワーの効率は改善し、その結果高い出力が得られる事がわかる。しかし La イオンの添加濃度に注目してみると、La イオンの添加濃度を上昇させると逆にスロープ効率は改善する事がわかる。これは CaF₂ 中に希土類イオンを添加した際に生じる共晶系の影響によるものだと考えられるが、具体的な機構は分かっていない。

CW 発振実験の結論として、高いスロープ効率を得るためには、低濃度の Yb イオンと高濃度の La イオンの添加が理想的である事がわかる。しかしこの場合吸収効率が落ちるため、十分に励起光を吸収するためには今よりも厚い媒質が必要になる。媒質の厚さは熱光学的効果や励起光のレイリー長により制限されるため、現実的な一定の厚さ(3~6 mm)の媒質を仮定すると、どちらのイオンも高濃度添加することが高効率化のためには理想的だと分かる。しかしこの場合熱伝導率の急激な低下が両イオンの添加により生じるため、合計の添加濃度には限界が生じる。今回の実験中では 3%La3%Yb の試料において非常に熱破壊が生じやすかったことより、現実的な限界は合計 5%ほどだと推察される。よって今後モード同期などの実験に用いる媒質としては 2%La3%Yb、2%La2%Yb などの添加濃度が最適であると結論づけた。

これらの結果に基づき、2%La2%Yb、厚さ 6 mm の試料を用いて SESAM モード同期実験を行った。共振器構成は Yb:LuAG セラミックモード同期実験とほぼ同等の Z 型共振器とした。励起光源には中心波長 975 nm、最大出力 12 W のブロードストライプ LD を用いた。Q スイッチ不安定性を防ぐため

SESAM には変調深さ 0.4%、SESAM の集光ミラーには ROC 100 mm のものを用いた。その結果安定したモード同期が得られた。しかしスペクトル幅が 2nm~10nm ほどと狭かったことから、今後共振器の最適化を通して短パルス化、高出力化を目指す予定である。

5. まとめ

本研究では超短パルスレーザー用媒質として有望な 2 種類のセラミック新材料、Yb:LuAG セラミックと Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックについて、特性評価とレーザー発振実験を行った。

Yb:LuAG セラミックはイオンの高濃度添加と高い熱伝導率を両立できることから高出力な超短パルスレーザー用利得媒質として最適である。Yb:LuAG セラミック Kerr レンズモード同期実験では平均出力 1.72 W、パルス幅 103 fs を実現した。この結果はパルス幅、出力ともに従来の結果を大幅に上回るものであり、また Yb:LuAG を媒質とした KLM は単結晶、セラミックを合わせて初めての実証であった。

Yb:CaF₂ は非常に広帯域な蛍光スペクトルと比較的高い熱伝導率を併せ持ち、Yb 添加材料にて現在最も短いパルス幅と高出力を両立できる材料の一つである。本研究ではこれをセラミック化し、また LaF₃ を微量添加した Yb³⁺:CaF₂-LaF₃ セラミックを開発し、その特性評価とレーザー発振実験を行った。蛍光スペクトル、吸収スペクトルでは添加濃度の組み合わせによってスペクトル形状がブロードに変化することを確認した。CW レーザー発振実験では添加濃度に大きく依存した特性の違いを確認した。中でも 2%La1%Yb にて対吸収にて 73% という大きなスロープ効率を確認した。最大出力は 2%La3%Yb の試料で測定した 3.97 W であった。これらのスロープ効率、最大出力はこれまで行われてきた Yb:CaF₂ セラミックの結果を上回るものであった。

参考文献

- [1] K. Beil *et al.*, in *Advanced Solid-State photonics 2009* (Denver, Feb. 2009), WB28
- [2] H. Nakao *et al.*, *Opt. Express* **20**, 15385 (2012)
- [3] D. Luo, *et al.*, *physica status solidi C* **10**, 967 (2013)
- [4] W. Ge, *et al.*, *Opt. Express* **22**, 2423 (2014)
- [5] P. Camy, *et al.*, *Applied Physics B* **89**, 539 (2007)
- [6] A. Shirakawa, *et al.*, *ASSL Congress*, paper JTh5A.7 (2013)
- [7] M. Sh. Akchurin, *et al.*, *Opt. Materials* **35**, 444 (2013)
- [8] P. Aballea *et al.*, *Optica* **2**, 288 (2015)