

# モード同期 Yb:CaF<sub>2</sub> レーザーの研究

白川研究室 小林 祐樹

## 1. 序論

レーザーが1960年に初めて発振[1]して以来、その有用な特性から様々な分野で研究と応用が行われてきた。特にモード同期によって得られる高出力超短パルスレーザーは、非常に短いパルス幅と高いピーク強度を持つことから、非熱微細加工や基礎物理学分野などに幅広く利用され、更なる研究が行われている。特に優れた特性を持ったチタンサファイアレーザー[2]は非常に広い利得帯域幅を持ち、優秀な熱特性と機械的特性からモード同期レーザーでは圧倒的に短いパルス幅を実現した[3]。しかしチタンサファイアはLD励起が難しく、装置も大掛かりなため産業応用として扱うには不向きであった。そこで直接LD励起が可能であるYb添加固体利得媒質を用いたレーザーの研究が行われるようになった。Yb添加材料はレーザーの励起波長と発振波長の近さから量子欠損が少なく熱が発生しにくい。またYb添加媒質の吸収・蛍光帯域幅が比較的広いことから、高出力超短パルスレーザーの利得媒質として幅広く応用されている。

Yb添加の母材はレーザーの特性を決める上でも重要な役割を持ち、添加される媒質によってその光学的特性、熱特性および機械的特性は大きく異なる。従来の固体レーザーの利得媒質は主に単結晶やガラスなどが用いられてきた。しかし、単結晶は母材としての品質には優れているが、作製可能な大きさが数cm程度である上に作製に多くの時間がかかるため生産性とサイズスケラビリティに欠点がある。またガラスは容易に大口径材料が作製可能な上に、生産性も高いことから大口径のレーザーの材料として向いているが、一方で熱特性と機械的特性が単結晶に比べ大きく劣るという欠点を持つ。

本研究で使用されているセラミック材料は単結晶に劣らない光学的特性を持ちながらサイズスケラビリティや生産性に優れているため、単結晶やガラスの双方の欠点を克服することのできる材料として注目されている。このことから世界中でも様々なセラミック利得媒質の開発が行われ、その光学的特性や高出力超短パルスレーザー発振の研究が行われている。

本研究では株式会社ニコンとの共同研究で作製されたYb:CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub>セラミックを使用してモード同期レーザーの研究を行った。このセラミックは広帯域な蛍光ス

ペクトルと比較的高い熱伝導率を持つYb:CaF<sub>2</sub>単結晶に対して、LaF<sub>3</sub>を共添加して作製されたセラミックである。このセラミック材料もYb:CaF<sub>2</sub>単結晶に近い特性を持つことから高出力超短パルスレーザーの発振に適した材料であり、また本研究ではより短いパルス幅を目指すために単層カーボンナノチューブ(SWCNTs)を可飽和吸収体として使用した。

レーザーの更なる高出力化のためには、先に示したセラミック材料のような新しい利得媒質の開発だけでなく、高励起によって引き起こされる熱効果を抑制する手法の確立も重要な要素となる。近年では、非常に薄い利得媒質を使用したthin-diskレーザーが、短パルスかつ高ピーク出力を得るレーザー光源として大いに注目を集めている。

thin-diskは厚さ数百μmの利得媒質であり、効率的な冷却による排熱性が高いため、媒質の熱歪みや熱レンズ効果などの共振器への影響を抑制可能である。よって高ピーク出力、高平均出力レーザーの媒質として優れておりSESAMやカーレンズモード同期による超短パルスレーザーの発振が数多く報告されている。

我々の研究室では将来的にYb:CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub>セラミックthin-diskを使用し、媒質の機械的特性を向上させることで、更なる高主力超短パルスのレーザーの開発を行うことを目的としている。本研究ではその前身としてYb:CaF<sub>2</sub>単結晶thin-diskを使用したモード同期レーザーについて研究を行った。Yb:CaF<sub>2</sub>単結晶thin-diskによるSESAMモード同期超短パルスレーザーはシュトゥットガルト大学によって報告[4]が行われており、平均出力17.8W、パルス幅285fsという結果であった。しかしYb:CaF<sub>2</sub>の蛍光帯域幅が約70nm程度であることから、実際にはより短いパルス幅のレーザー発振も可能であると考えられている。そこで本研究ではYb:CaF<sub>2</sub>単結晶thin-diskを用いてカーレンズモード同期を行うことで、より短いパルス幅をもつ超短パルスレーザーの開発を目指し研究を行った。

## 2. 原理

### 2.1 Kerr レンズモード同期

カーレンズモード同期(以下KLMとする)は非線形媒質中の光カー効果によって起こる屈折率変化による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。KLMはSESAMを用いたモード同期と比べて、深い高速変調を利用することで利得帯域幅を超える短パルス化が可能という特長がある。

光カー効果は十分に強度の高い光がある媒質に入射したときに以下のように屈折率 $n$ が強度 $I$ に比例して変化する現象のことである。

$$n = n_0 + n_2 I$$

ここで $n_2$ は非線形屈折率である。高強度の gaussian ビームが媒質に入射すると光カー効果によって媒質の屈折率分布はレーザー照射部分に対して中心の屈折率が高い状態になるためレンズ状になり自己収束が引き起こされる。図1にはハードアパーチャーKLMの概念図を示す。

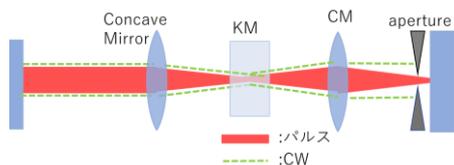


図1 ハードアパーチャーKLM 概念図

## 2.2 Thin-disk レーザー

Thin-disk は厚さ数百  $\mu\text{m}$  の非常に薄い利得媒質であり、効率的な冷却を行うことで一次元的な温度分布とすることができる。厚さ数 mm の bulk 型利得媒質に比べ、媒質の熱歪みや熱レンズ効果等による光学系への悪影響を抑えることが可能である。その媒質の薄さから励起光が通過する際の吸収量が得にくいいため、励起光が複数回媒質を通過するようなマルチパスの励起光学系を必要とする。図2には thin-disk レーザーのマルチパス励起光学系を示す。

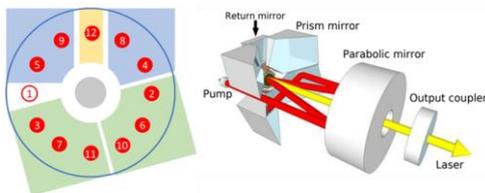


図2 thin-disk レーザー励起光学系

エラー! 参照元が見つかりません。の右図からわかるように励起光学系は放物面鏡と傾斜プリズムによって disk を 24 回通過する構造となっている。本研究で使用した Yb:CaF<sub>2</sub> 結晶 disk は Yb 添加濃度 2.88 at.% の厚さ 300  $\mu\text{m}$  を使用しており、波長 976 nm の吸収係数が  $3.1\text{cm}^{-1}$  であるため、90% 程度の吸収量となっている。99% 以上の吸収にはより多くの通過が必要となるが、実際にはミラーと disk での反射損失が存在することより 24pass のモジュールを使用している。

## 2.3 Yb:CaF<sub>2</sub> 単結晶

一般的に広く使用されている Yb:YAG と比較して、広い利得帯域幅 (~70nm) をもち、長い蛍光寿命 (2.0ms) を持つことから、高出力レーザーへの応用が期待される材料である。また CaF<sub>2</sub> はその潮解性や劈開性から難加

工性材料の一つである。本研究では業者に加工を委託し、厚さ 300  $\mu\text{m}$ 、直径 8 mm の thin-disk を作製し、使用した。また disk 表面には AR コーティング、裏面には HR コーティングが施されている。図3は本研究で使用した Yb:CaF<sub>2</sub> 単結晶のスペクトルである。

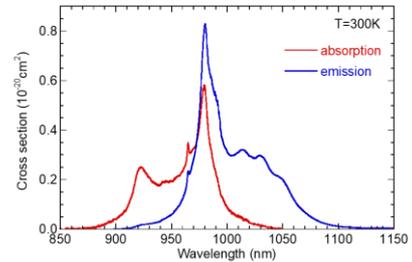


図3 Yb:CaF<sub>2</sub> の吸収・蛍光スペクトル

## 2.4 Yb:CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub> セラミック

本研究で扱ったセラミックは株式会社ニコンによって製作されたセラミックスである。このセラミックは CaF<sub>2</sub>、LaF<sub>3</sub> と YbF<sub>3</sub> の結晶を原材料としている。これらを蒸留水中で湿式混合し、乾燥後に加圧して成形体を作製した後に大気中で 750 度から 900 度の温度で一次焼却を行う。その後、さらに等方的に圧力をかけながら焼結させる Hot isostatic pressing(HIP)という方法[17]でアルゴンガスなどの不活性気体中にて 700 度から 1000 度の温度で二次焼却を行うことで最終的にセラミックが焼結される。Yb と La の添加濃度によってスペクトルに異なり、Yb 添加量が多くなるとスペクトルがなだらかになる傾向がある。図4と図5はこのセラミックの吸収と蛍光スペクトルである。

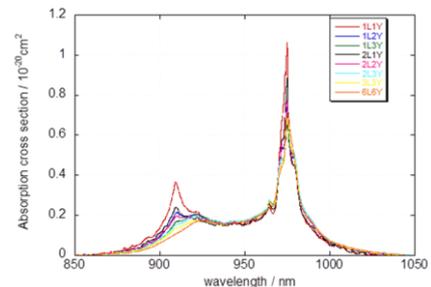


図4 Yb:CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub> セラミックの吸収スペクトル

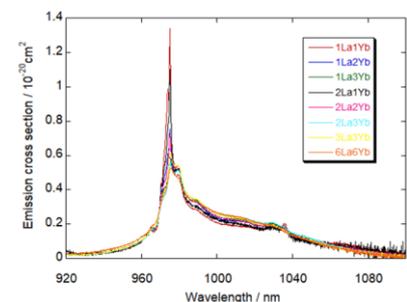


図5 Yb:CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub> セラミックの蛍光スペクトル

## 3. Yb:CaF<sub>2</sub> 単結晶 thin-disk レーザー

### 3.1 disk 接合

ヒートシンクとの接合は disk の面形状と励起状態の

際の熱歪みに影響を与えるため、共振器構成にかかわる非常に重要な工程である。本研究では UV 硬化接着材を使用し、銅製ヒートシンクと disk の接合を行った。実際に使った接合装置を図 6 に示す。接合装置はフィゾー干渉計とヒートシンクを加熱するセラミックヒーターで構成されている。フィゾー干渉計の基準面には精度  $\lambda/20$  の光学基板が使用されている。励起中の熱応力を最小にするためにセラミックヒーターで  $100^{\circ}\text{C}$  に加熱しながら光学基板で disk 表面を押下しながら UV ランプ(中心波長  $365\text{ nm}$ )で接着剤の硬化を行った。接着中には光学基板と disk 間の干渉縞を観測し、干渉パターンが大きく崩れないことを確認しつつ接合を行った。UV 光の照射時間は約  $10\sim 15$  分程度行い、接着剤の硬化後には急激な応力変化による disk の破壊を防ぐために時間をかけて disk の冷却が行われた。

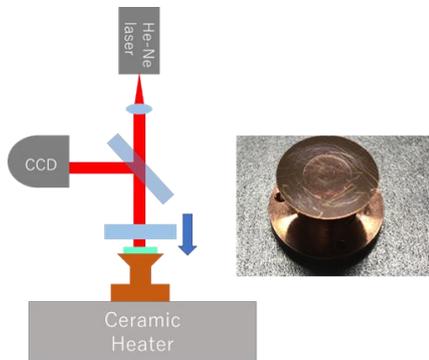


図 6 disk 接合装置

接着後には視認されるような歪みや接合不良などは確認されなかったため、次に接合された面形状の測定を行った。

### 3.2 面形状測定

接合時の thin-disk の形状は静的な状態においてある程度の曲率半径を持った凹面または凸面の球面状態である事が望ましく、表面の状態が球面でない場合には HR 層が歪んだ形状であることを意味するため、非点収差や回折損失が発生することになる。本研究において接合された disk はマイケルソン干渉計とフーリエ変換法を使用して表面の形状測定を行った。図 7 にはその構成を示す。

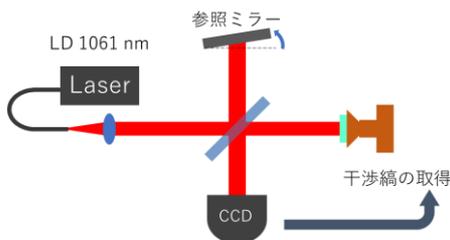


図 7 マイケルソン干渉計による disk 波面取得

参照光には実際に使用するレーザーの中心波長に近い  $1061\text{ nm}$  のファイバーカップル LD を使用した。マ

イケルソン干渉計を接合した disk も含めて構成した後、表面精度  $\lambda/10$  の精度をもつ参照ミラーと disk の HR 層にて反射する光で干渉縞を観測する。このとき参照ミラーを傾けることによって、干渉縞の空間スペクトル上の原点を除いた干渉縞を得ることによってノイズの影響が除去された表面形状の干渉縞を得ることができる、このとき得られた干渉縞に対してフーリエ変換法を使用することによって表面形状を抽出した。

### 3.3 面形状測定解析結果

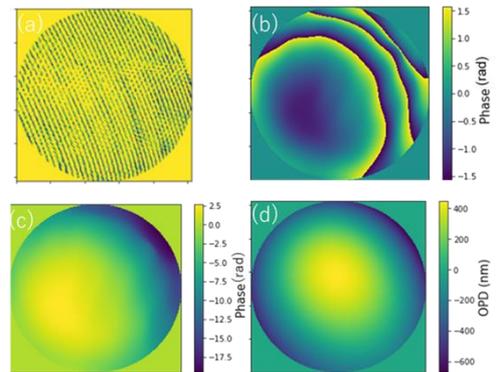


図 8 取得干渉縞と面形状測定

図 8 において(a)は前述のマイケルソン干渉計によって得られた干渉縞である。(b)は干渉縞間隔をフーリエ変換し、分離された成分のうち中心のノイズを除いた成分をフーリエ空間の中心にシフトされた後に逆フーリエ変換が実行されて得られたラップ位相である。ここで得られた位相は  $0$  と  $2\pi$  で互いに結合させる必要があり、位相アンラップ処理を行い結合された位相が(c)にあたる。(d)は Zernike 近似多項式を使用してフィッティング後のピストン光と傾斜を示す項を取り除いた際に得られる低次の項を抽出した波面である。この波面は disk の HR 層の形状を示した波面に相当する。

接合を行った disk は曲率半径  $8\text{ m}$  の凹面形状であると確認された。この手法によって収差の少ない凹面形状の良質な接合が得られた。なおこの波面は静的な状態における波面形状であり、実際に高出力な励起を行った場合に熱レンズ効果やヒートシンクからの熱応力の影響が支配的になり、凹面形状はその曲率が大きくなる様に形状変化し、場合によっては凸面にもなり得る。

### 3.4 CW レーザー発振実験

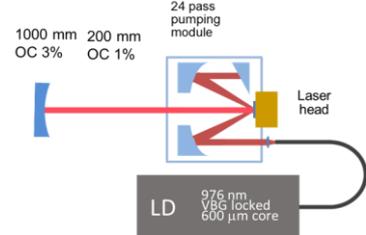


図 9 Thin-disk CW レーザー発振器

図9は使用した共振器である。ヒートシンクに接合されたdiskを24passのモジュール内部に配置した。励起には波長976nmの600μmコアのVBGロックファイバーを使用した。コリメートレンズの種類によってdisk上での励起直径の大きさを変えることができ、実際には1.9mm、2.3mmおよび2.9mmの励起直径で発振を行った。出力結合鏡(OC)は曲率半径R=1000mmの3%透過ミラーと曲率半径R=200mmの1%透過ミラーの2つを使った。各レーザー発振時には必ずIRカメラ(FLIR A325sc)を使用して励起およびレーザー発振箇所の温度測定を常時行い、温度が100°Cを超えない事を確認しながらレーザー発振を行った。このとき温度の測定に使用したIRカメラの設定値における対象物の放射率は0.9として測定を行っている。

各結果にて得られた出力と光・光変換効率、レーザー発振時のdisk上温度の変化を図10から図13にまとめた。

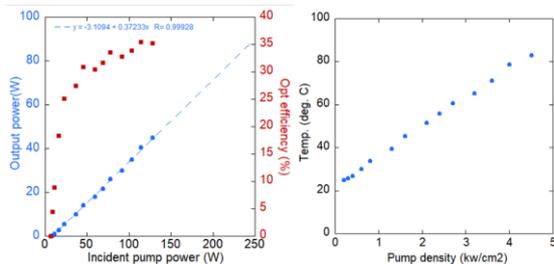


図10 励起直径1.9mm, OC1%のCW発振と温度

励起直径1.9mmの時OC1%において最大出45.1W(励起128W)、スロープ効率37%、光・光変換効率は35%であった。この時のdisk温度は83°Cであった。

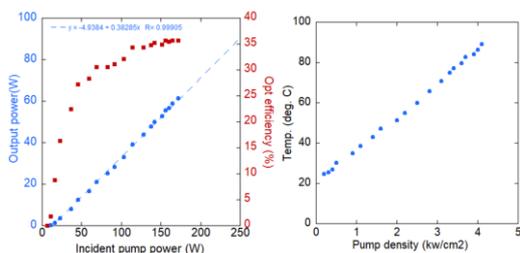


図11 励起直径2.3mm, OC1%のCW発振と温度  
励起直径2.3mmの時OC1%において最大出61.3W(励起171W)、スロープ効率38%、光・光変換効率は36%であった。この時のdisk温度は89°Cであった。

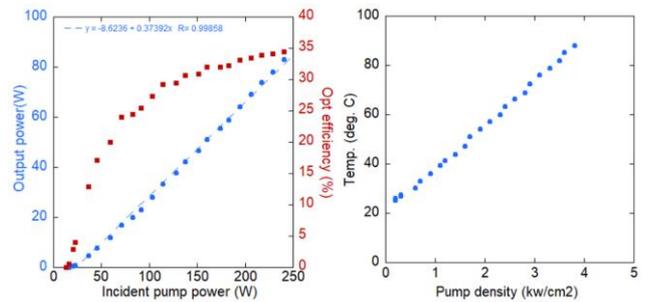


図12 直径2.9mm, OC1%のCW発振と温度

励起直径2.9mmの時OC1%において最大出87.0W(励起251W)、スロープ効率37%、光・光変換効率は35%であった。この時のdisk温度は89°Cであった。このとき出力87WがCW発振では最大の出力となっている。これまでの結果より励起直径を増加させて最大の励起量を上げることで高い出力を得ることができた。一方でスロープ効率については37%程度である事が確認された。

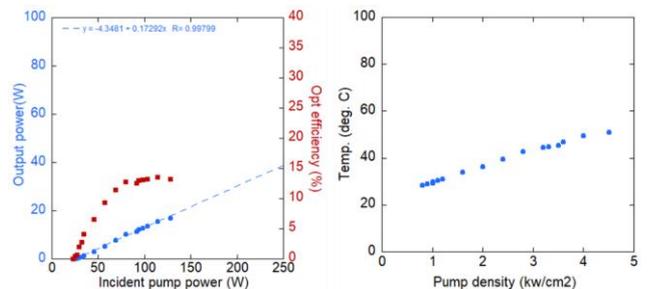


図13 直径1.9mm, OC3%のCW発振結果と温度

励起直径1.9mmの時OC3%において最大出16.9W(励起128W)、スロープ効率17%、光・光変換効率は13%であった。この時のdisk温度は50.3°Cであった。これはOC1%の発振実験の後に出力を増やすために行った実験であるが、OC1%と比較して大きく出力と効率が低下した。またこの時レーザー発振時のdisk上温度の値も低下している。励起直径2.9mm, OC1%の発振結果でも38%という比較的低い値であるため、モード同期共振器においても共振器内の損失を可能な限り減らす必要性がある。

### 3.5 Kerr レンズ共振器の設計

共振器の設計は非線形 ABCD 行列の計算によって設計された。非線形 ABCD 行列を計算する上で、各光学素子間の距離を図14に示す。これらの中で最も共振器のモードと安定領域の変化に影響を与えるのは2つの凹面鏡と Kerr 媒質間の距離を示す L2 と L3 である。これらの位置を適切に調整することによって前述したソフト・ハードアパーチャー効果の計算を行う。

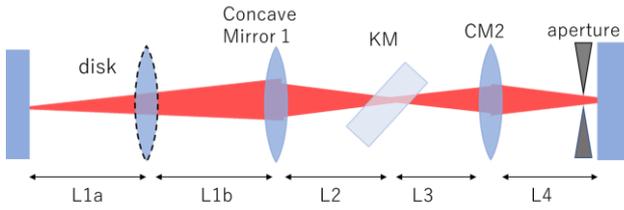


図 14 光学素子間の距離

図 15 には横軸を L2、縦軸を L3 としてそれぞれを変化したときに CW モードに対しての disk 上での CW モードに対する収縮率および OC 上での収縮率についてマッピングされたグラフを表す。

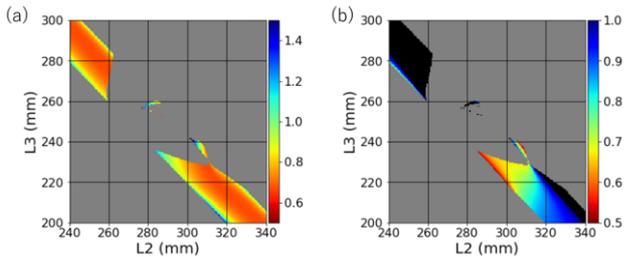


図 15 (a)disk 上でのソフトアパーチャー効果 (b)OC 上の自己収束効果

図 15 中グレーの領域は完全な不安定領域を示している。色がついた領域では CW に対するモード同期時のビーム径の相対比を示しており、理想的には図中橙色で示される範囲は元の disk 直径に対して 0.8 倍程度のモード径となり、これは TEM00 の基本モードを共振させやすくする点で望ましい領域であるといえる。加えて図 15 (b)も同様に図中グレーの領域が不安定領域を示しており、赤色に近いほどモード同期時の収縮率が高く理想的な状態である。(a),(b)の結果に加えてアライメントの難しさも考慮し、L2=302 mm, L3=229 mm を凹面鏡配置の距離の目安とした。また、この時のレーザー共振器全体における CW モードとカーレンズモードそれぞれの sagittal と Tangential のモード半径変化は次の図 16 のようになった。

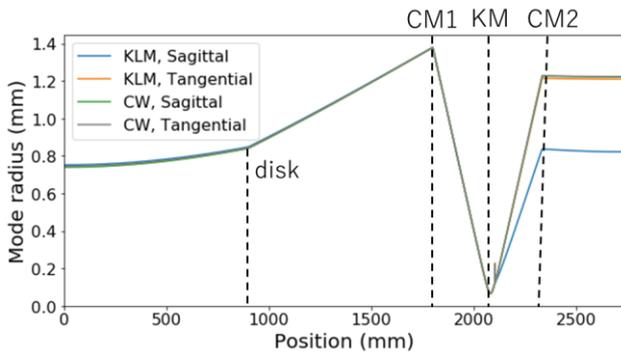


図 16 共振器中におけるビーム半径の変化

図 16 より disk 状のビーム直径が励起直径の 0.8 倍程度の大きさであればマルチモードを抑制し、基本モード TEM00 でレーザー共振しやすくなるので励起直径を

2.3 mm とした。これによってレーザーの disk 上でのモードは励起直径に対して 0.7 倍程度の大きさとなる。また OC 直前において sagittal 側で大きくモード径が収束しており、30%程度の変調深さがある事がわかる。よって sagittal 方向に対してスリットをハードアパーチャーとして共振器に組み込むことでまたこの収束効果が起こった場合においても disk 付近においてビーム半径の変化が見られないため、ハードアパーチャー-KLM 同期の共振器として適した状態であると考えられる。この非線形 ABCD 行列の結果をもとにして、実際に共振器を組み立てた。

### 3.6 Kerr レンズモード同期実験および結果

図 17 に本研究で構成した Kerr レンズモード同期レーザー共振器を示す。

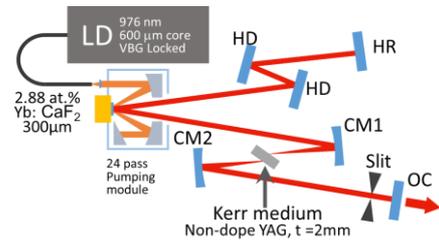


図 17 Kerr レンズモード同期レーザー共振器

励起直径 2.3 mm、OC は 1% と HR ミラーを使用した。カー媒質には厚さ 2 mm の YAG をブリュスター角で配置した。分散補償には負分散の高分散鏡(HD)を使用し共振器一周あたり  $-4000\text{fs}^2$  の負分散を与えた。OC 前にハードアパーチャーとしてスリットを挿入した。

作成した共振器を適宜最適化しながらモード同期共振実験を行っているが、モード同期には至っていない。OC1%において励起 100W 程度で共振器の調整を行っていたが、出力が 0.2~0.3W 程度と低い値になっている。共振器内パワーが低い値であることから、十分な変調深さが得られていないことがモード同期を達成できないことの要因の一つであると考えられる共振器に変調を加えた際に一時的にモード同期のような変調が見られるときもあった。それは出力 0.2W(励起 88W)の時に次のような瞬間的な変調であった。

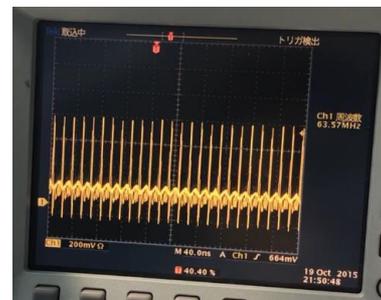


図 18 変調を加えた際の瞬間的な変調

図 18 で示されているのは共振器にわずかな変調を与えた際に見られた瞬間的な変調であってモード同期のパ

ルスではない。繰り返し周波数からモード同期によるものに近いと考えられるが全く安定はしていない。共振器両端面を HR として共振器の損失を減らし、共振器内部パワーを上げることによってモード同期発振させることも目指したが、現在もモード同期には至っていない。今後は更なる共振器の最適化や高濃度添加媒質の使用などを行うことで、カーレンズモード同期発振を目指す。

#### 4. Yb : CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub> モード同期レーザー発振実験

本研究では単層カーボンナノチューブ (SWCNT) を可飽和吸収体として用いて Yb:CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub> セラミックのモード同期実験を行った。図 19 に共振器を示す。

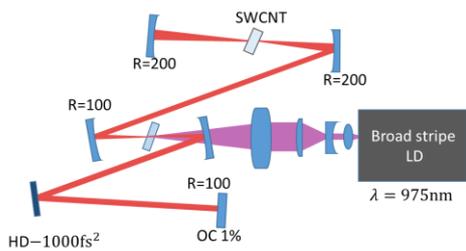


図 19 Kerr レンズモード同期レーザー共振器

Z 型の共振器となっており、利得媒質には厚さ 2.8 mm の 2% の La と 3% の Yb が添加されたセラミック (2La3Yb) と試料をブリュスター角で配置している。結晶の励起には波長 975 nm のブロードストライプ LD を使用し、励起の最大パワーは 10 W であり、その集光径は横 130 μm × 縦 30 μm であった。分散補償には -1000fs<sup>2</sup> の負分散の高分散鏡 (HD) を共振器中に配置して、共振器一周あたりに -2000fs<sup>2</sup> の負分散を与えている。SWCNT は R=200 mm の凹面鏡の集光点にブリュスター角で挿入した。SWCNT は光軸に平行移動可能な状態にしており、SWCNT 上のビーム径に対してフルエンスを調整できるようにしてある。SWCNT の飽和フルエンスは 28 μJ/cm<sup>2</sup>、変調深さ 0.63% である。また共振器全長は約 1200 mm になっている。このときモード同期と思われるパルス列が観測された、その時のオシロスコープによるパルス列を図 20 に示す。

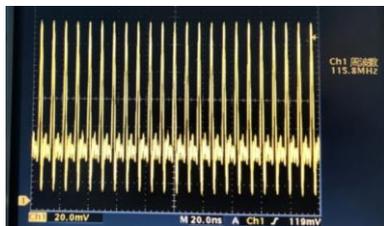


図 20 モード同期時のパルス列

この時の出力は最大平均出力 103 mW (励起 10W) で、繰り返し周波数は約 116 MHz であった。共振器全長が 1200 mm であることを考慮すると共振器全長から計算される繰り返し周波数は 120 MHz となるのでモード同

期によって得られたパルス波形であると考えられる。次に図 21 にこのパルス列が得られたときに測定されたスペクトルを載せる。

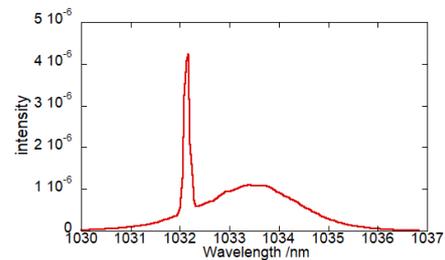


図 22 SWCNT モード同期時スペクトル

モード同期時には幅 2.6 nm とわずかではあるがスペクトルの広がりが見られた。しかし同時に 1032 nm 付近の CW 成分も同時に確認されており完全なモード状態ではないと考えられる。そのため、更なる最適化のために共振器のミラーを動かしたところセラミック表面へのダメージによってレーザー発振が確認されなくなった。それ以降においてセラミック結晶の使用位置を変えてモード同期状態の再現性を確認しようとしたが、その再現性は得られなかった。

#### 5. まとめ

YbCaF<sub>2</sub> 単結晶 thin-disk 良質な接合に成功し、その CW レーザー発振に成功した。励起直径 2.9 mm、OC1% で最大出力は 87 W (励起 251 W)、スロープ効率 37% であった。この disk を用いた Kerr レンズモード同期共振器を設計、構成を行ったが安定したパルス発振を得ることはできていない。また SWCNT を可飽和吸収体として用いて Yb:CaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub> セラミックのモード同期実験を行った。この時の出力は最大平均出力 103 mW (励起 10W) で、繰り返し周波数は約 116 MHz であった。

#### 参考文献

- [1] T.H.Maiman, "Stimulated optical radiation of ruby," Nature 187,493, (1960).
- [2] P.F.Moulton, *et al.*
- [3] R.Ell, *et al.*, "Generation of 5-fs pulses and octave spanning spectra directly from a Ti:sapphire laser," Opt. Lett. 26, 373 (2001).
- [4] B.Dannecker, *et al.*, "SESAM-modelocked Yb:CaF<sub>2</sub> thin-disk-laser generating 285 fs pulses with 1.78 μJ of pulse energy", Laser Phys. Lett. 13, 055801 (2016)