

波長 1.6 μm 帯 LD 励起中赤外セラミックレーザーの開発

戸倉川研究室 菊地音

1. はじめに

波長 2~3 μm 帯中赤外領域のレーザー光は一般的な 1~1.5 μm 帯レーザー光とは異なる光学的特性を示し、医療や加工、環境測定などへの応用が期待されている。この領域のレーザーとして Tm レーザーや Cr²⁺遷移金属レーザーなどが知られている。前者は安価で高出力な 0.8 μm 帯レーザーダイオード(LD)による量子効率 2 に迫る 2 for 1 pumping process や 1.5~1.9 μm 帯励起光源を用いた量子欠損の少ない in-band 励起による高効率・高出力動作が可能である。後者は広帯域で強い吸収(1.5~2.1 μm)と蛍光(1.9~3.4 μm)を有しており、同様に 1.5~1.9 μm 帯励起光源を用いた超短パルス動作が良く知られている。

現在まで我々は波長 1.6 μm 帯ファイバーレーザーを励起光源とした超短パルス Tm レーザーの開発を報告してきた。対して本研究では小型で低コスト、高効率な波長 1.6 μm 帯の LD を用いた直接励起による、Tm³⁺:Lu₂O₃ と Cr²⁺:ZnS レーザーの開発を目指した。

2. 原理

2.1. Tm³⁺:Lu₂O₃ 利得媒質の特徴

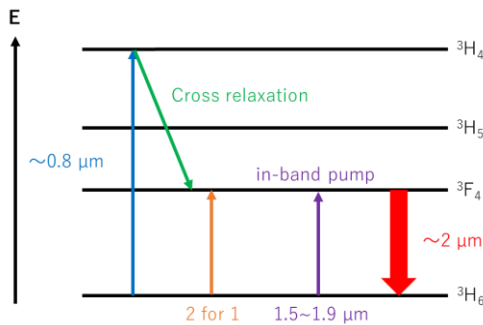


図 1. Tm³⁺のエネルギー準位図

図 1 に Tm³⁺のエネルギー準位図と励起プロセスの概要を示す。0.8 μm 帯と 1.6~1.9 μm 帯の光で励起することが可能であり、前者では 0.8 μm 帯の光で ³H₆ から ³F₄ に励起すると、³H₄ から ³F₄ への緩和過程に伴うエネルギー遷移によって新たに ³H₆ から ³F₄ へ交差緩和過程(Cross relaxation)が発生する。これにより 1 つの光子で 2 つの電子をレーザー上準位に励起する量子効率 2 に迫る動作が可能であり、このとき Stokes 効率についても 80% と非常に高い値を得られる。しかし、交差緩和過程には Tm³⁺の高濃度添加(シリカガラ

スの場合~2 at.%以上)が必要であり、局所的な発熱等の問題が起こりうる。本研究ではこれを避けるため、後者の 1.6 μm 帯での in-band 励起を採用した。この励起法は交差緩和過程を伴わない ³H₆ から ³F₄ のレーザー準位への直接的な励起を行うことができ、量子欠損の小さなレーザー動作を可能にする。

次に、本研究で用いた Tm³⁺:Lu₂O₃ 利得媒質の吸収と利得について説明する。Tm³⁺:Lu₂O₃ 利得媒質は波長 2 μm 帯に広帯域な利得を有し、また Tm³⁺の添加濃度にかかわらず、優れた熱伝導性も持つことから高出力レーザー用の利得媒質として注目を集めている。図 2 (a), (b)に 0.8 μm 帯と、1.6 μm 帯の Tm³⁺:Lu₂O₃ の吸収断面積を示す。吸収断面積は 1.6 μm 帯において 0.8 μm 帯よりも約 2 倍強いピークと約 3 倍広い線幅を有していることがわかる。またピーク以外の土台成分も大きい。これによりスペクトル幅の広い LD 励起において高い吸収効率が見込まれ、高効率で高出力なレーザー動作が見込まれる。

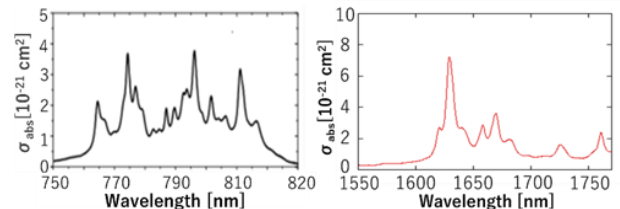


図 2. Tm³⁺:Lu₂O₃ の吸収断面積(a)0.8 μm 帯[1], (b)1.6 μm 帯

図 3 に反転分布の値を変化させたときの Tm³⁺:Lu₂O₃ の利得断面積を示す。波長~1950 nm と波長~2070 nm を中心波長として線幅 75 nm 程度の利得ピークを有している。水の吸収が存在する波長~1950 nm よりも長波長側に利得を有することで、水蒸気の吸収に妨げられずにレーザー動作が可能となる。

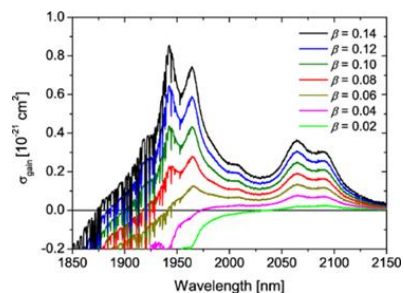


図 3. Tm³⁺:Lu₂O₃ の利得断面積 (β =上準位分布量) [2]

2.2. Cr²⁺:ZnS 利得媒質の特徴

図4に本研究で用いたCr利得媒質Cr²⁺:ZnSの吸収及び誘導放出断面積を示す。Cr²⁺:ZnSは「中赤外のチタンサファイアレーザー」と呼ばれ、1.8~3.4μmの中赤外領域で広帯域な誘導放出断面積を有しており、超短パルス性に優れている。また、1.5~2.1μm帯に大きく広帯域な吸収を有しており、一般的なErファイバーレーザーやTmファイバーレーザーなどでの励起が可能である。本研究で用いた励起LDはスペクトル幅が~10nmほどと広いが、広帯域な吸収を持つCr²⁺:ZnSであれば、高効率な励起が可能である。

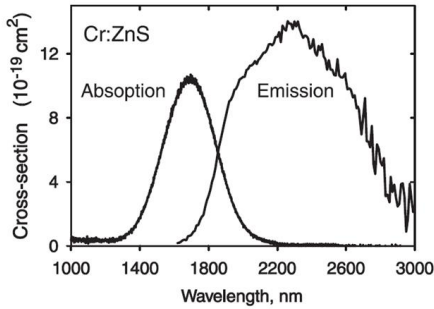


図4. Cr²⁺:ZnSの吸収/誘導放出断面積[3]

2.3. 共振器設計

2.3.1. 自己無撞着法

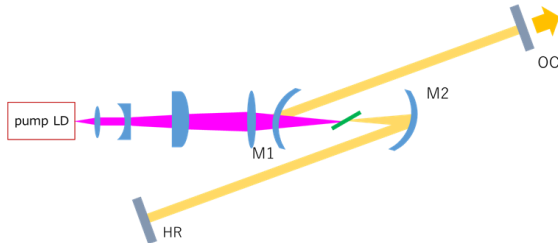


図5. 実験系

レンズ状の光学要素を複数個含むような共振器を考える場合、共振器内に低損失の安定モードが存在するかを知り、存在する場合にはビームスポット $\omega(z)$ および波面の曲率半径 $R(z)$ を光軸の任意の位置について決める。[4],[5]。ここで、自己無撞着法を用いる。これは、共振器の安定な固有モードにおいては、光電磁界は共振器内を1周巡回したとき、初めの分布に帰するという条件を課すものである。共振器内の任意位置に参照面を定め、その地点に対する定常複素パラメータを q_s と表し、ガウシアンビームのABCD則を用いて

$$q_s = \frac{Aq_s + B}{Cq_s + D} \quad (1)$$

という条件を課す。ここで、 A, B, C, D はちょうど1周期の巡回に対する光線行列の要素であり、光線の出発点と終着点は任意に選んだ参照面である。式(1)を $1/q_s$ について解くと

$$\frac{1}{q_s} = \frac{(D-A) \pm \sqrt{(D-A)^2 + 4BC}}{2B} \quad (2)$$

共振器内の個々の部品に関する行列はユニモジュラ行列であり、 $A_i D_i - B_i C_i = 1$ であるので、その積で与えられるABCD行列も $AD - BC = 1$ を満たす。よって、式(2)は

$$\begin{aligned} \frac{1}{q_s} &= \frac{(D-A)}{2B} \pm i \frac{\sqrt{1 - \left[\frac{D+A}{2}\right]^2}}{B} \\ &= \frac{D-A}{2B} + \frac{i \sin \theta}{B} \end{aligned} \quad (3)$$

のように書くことができる。ただし、

$$\cos \theta = \frac{D+A}{2}, \quad \theta = \pm \left| \cos^{-1} \left(\frac{D+A}{2} \right) \right| \quad (4)$$

ガウシアンビームの閉じ込め条件は、ビームスポットの2乗 ω^2 が有限の整数であることが必要である。 q と ω および曲率半径 R との関係が

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{R} - i \frac{\lambda}{\pi \omega^2 n} \quad (5)$$

であるので、上式と式(3)を比較することによって、ビームが閉じ込められる条件は式(4)の θ が $\sin \theta / B < 0$ となる。また $|(D+A)/2| < 1$ であることが必須である。これは共振器の安定化条件であり、ガウシアンビームを安定して発振させるためには、共振器内の任意の点すべてにおいてこの条件を満たしている必要がある。この時、定常状態での式(5)は

$$\begin{aligned} \frac{1}{q_s} &= \frac{(D-A)}{2B} \pm i \frac{\sqrt{1 - \left[\frac{D+A}{2}\right]^2}}{|B|} \\ &= \frac{D-A}{2B} + \frac{i \sin \theta}{|B|}, \quad \theta < 0 \end{aligned} \quad (6)$$

という条件になる。式(5)を用いると、式(6)から参照面における曲率半径 R および ω が以下に求まる。

$$R = \frac{2B}{D-A} \quad \omega = \left(\frac{\lambda}{\pi n}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{|B|^{\frac{1}{2}}}{\left[1 - \left[\frac{D-A}{2}\right]^2\right]^{\frac{1}{4}}} \quad (7)$$

2.3.2. 非点収差補償

レーザーが角度のついた物質中を通過するとき、角度によって非点収差が生じる。今回の実験の場合には、共振器中に利得媒質がブルースター角で挿入されている。非点収差により媒質での集光の位置が水平方向と垂直方向で異なったり、同じく各方向で共振器中での安定条件が異なってしまったりすることから、その収差を補償する必要がある[6]。ブルースター角で配置された厚さ t の媒質に対する水平面と垂直面での有効光路長は、それぞれ d_x と d_y として

$$d_x = \frac{t\sqrt{n^2+1}}{n^2} \quad (8), \quad d_y = \frac{t\sqrt{n^2+1}}{n^4} \quad (9)$$

と表せる。また、凹面鏡でも非点収差が生じる(図5中のM1、M2)。入射角 θ として焦点 f で生じる水平面と垂直面での収差は、それぞれ f_x と f_y とすると

$$f_x = \frac{f}{\cos\theta} \quad (10), \quad f_y = f \cdot \cos\theta \quad (11)$$

と表せる。また、この共振器中で収差を補償するための条件として、空気中での光路長を d_{air} 、一次光の媒質内での有効光路長 $d_{1,x}$ と $d_{1,y}$ 、共振器中の凹面鏡M1とM2の曲率半径を R とし、収差で生じる微小変化を δ_x と δ_y とおくと

$$\begin{aligned} d_{1,x} &\equiv R + f_x + \delta_x = d_{air} + d_x \\ d_{1,y} &\equiv R + f_y + \delta_y = d_{air} + d_y \end{aligned} \quad (12)$$

である。 δ_x と δ_y が等しいとき、水平方向と垂直方向での非点収差が補償されるので、その共振器条件は

$$d_x - d_y \cong f_y - f_x \quad (13)$$

と表される。

2.4. モード同期

超短パルス発生については、周波数空間と時間の間に以下の式のような不確定性原理の式が成立することが知られている。

$$\Delta t \cdot \Delta \nu \geq k \quad (14)$$

これはフーリエ変換の関係を表しており、 k についてはパルスの形状によって決定される定数である。例えばパルス形状が sech^2 型で定義されるときは0.315となる。この式を見てわかるように、超短パルス発生には、ブロードな利得帯域幅を有していることが非常に重要となる。このことから、前述した2種類の利得媒質は広い利得帯域幅を有しており超短パルス発生には非常に有用である。また、一般に光波の位相は煩雑であるが、位相を一致させることで選択的なパルス発生が可能となる。

モード同期の方法として、大きく2つ挙げられる。電気光学変調器(Electric Optic Modulator, EOM)や音響光学変調器(Acoustic Optic Modulator, AOM)などの機構を共振器内外に組みQスイッチと呼ばれる動作を行う能動モード同期と、可飽和吸収体や非線形偏波回転を用いた受動モード同期である。前者に関しては、外部から強制的に損失を与えることでパルス発振できない状態を作ったのち、利得を与えることでエネルギーの高いパルスを得ることができる。後者に関しては、後述するような共振器内光強度に応じて吸収が変化するような素子を挿入することで、受動的にパルス発振が可能である。能動モード同期については、パルス幅がEOMやAOMのゲート時間などの機器性能に依存するところがあり、~ナノ秒パルスの発生方法として一般的である。より短いフェムト秒パルスの発生は能動モード同期では難しいため、近年受動モード同期での研究が多く進められている。本研究では、半導体可飽和吸収体を用いた受動モード同期実験について行った。

2.5. 半導体可飽和吸収体

伝搬する光の強度が閾値よりも低いとき吸収が大きくなり、光の強度が高くなると吸収飽和が起こることによって吸収が非常に小さくなる材料の特性を飽和吸収という。可飽和吸収体は、この飽和吸収の特性を利用して伝搬する光の強度に応じた損失を与えることのできる素子のことを指す。特に、可飽和吸収体として半導体を用いたものを、半導体可飽和吸収体(Semiconductor Saturable Absorber)と呼ぶ。本研究では、半導体可飽和吸収体と特定の波長の光だけを反射するブラッグ反射鏡を組み合わせた半導体可飽和吸収ミラー(Semiconductor Saturable Absorber Mirror, SESAM)を用いた。

SESAMの機構については図6に示す。この素子を

共振器のエンドミラーとして挿入することで、可飽和吸収体の特性により、共振器内を伝搬する光の位相がそろっているときは強め合い、そろっていない時は弱め合うという状態を作ることができる。この効果により位相がそろっているパルスを選択的に発生させることが可能となる。

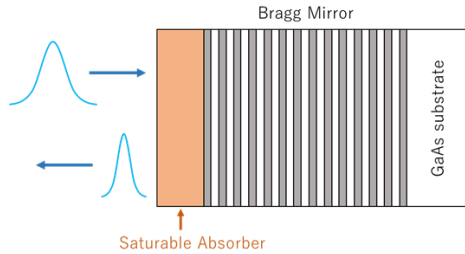


図 6. SESAM の機構

SESAM の指標として、変調深さ、飽和フルエンス、非飽和損失、緩和時間、破壊閾値などが上げられる。特に、共振器の設計において前半の 4 項目について考慮する必要がある。変調深さとは飽和可能な損失量を表す。飽和フルエンスとは可飽和吸収体の吸収飽和が起こるようなフルエンスを指し、SESAM を動作させる場合には飽和フルエンスを超えるような強度の光を入射する必要がある。非飽和損失とは、光の強度によらずに発生する損失を指している。緩和時間については、飽和した損失が回復するまでの時間を示している。このためパルス間の時間よりも緩和時間が短かった場合には、受動モード同期を得られないということが発生する。これらの指標を踏まえ、安定したソリトンモード同期に必要な共振器内パルスエネルギーの閾値 $E_{p,c}$ は以下のように示される[7]。

$$E_{p,c} = \sqrt{F_{sat,L} A_{eff,L} F_{sat,A} A_{eff,A} \Delta R} \quad (15)$$

ここで、 $F_{sat,L}$ は利得媒質の飽和フルエンス、 $A_{eff,L}$ は利得媒質中の実効断面積、 $F_{sat,A}$ は SESAM の飽和フルエンス、 $A_{eff,A}$ は SESAM 上での実効断面積、 ΔR は SESAM の変調深さを示している。この閾値よりも共振器内光強度が低い場合にはモードロックが不安定になり、Q スイッチ発振が発生し易く安定したパルス動作を得ることが難しくなる。

3. Tm³⁺:Lu₂O₃ レーザー実験

3.1. LD の集光及び出力特性の評価

今回励起光源として用いた波長 1.6 μm 帯 broad-stripe LD(エミッタサイズ $1 \times 95 \mu\text{m}$)は温度上昇に応じて発振波長の長波長シフトが発生するという特徴を持つ。今回、強励起を行うために同 LD を偏光ビームスプリッター(PBS)により結合し励起した。励起系については以下の図 7、結合励起系の出力特性と中心波長入力電流依存性を図 8 に示す。

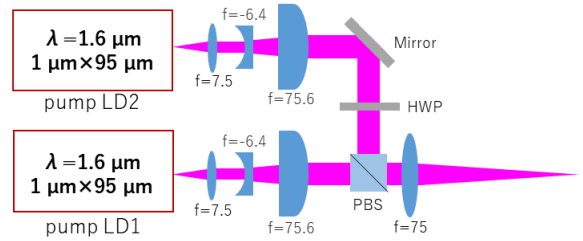


図 7. 結合励起系

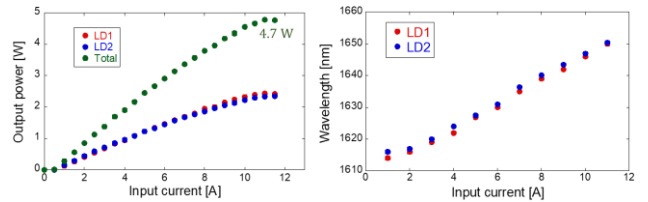


図 8. (左)LD の出力特性、(右)中心波長入力電流依存性

増設前には最大励起 3.5 W 程度であったことから、1.4 倍程度のパワーで励起可能となった。また、利得媒質中での集光特性について、以下の表 1 に設計値を含めて記載する。結合した場合には、単一の LD の時よりもビーム径が大きくなったが、これは LD2 と LD1 の結合後の光路が一致していないことが考えられる。

表 1. 増設励起系における集光点でのビーム径

		設計値 [μm]	ビーム径 [μm]
LD1	水平	60	60
	垂直	40	55
LD2	水平	60	62
	垂直	40	59
LD1+LD2	水平	60	63
	垂直	40	73

3.2. 実験構成

図 8 に Tm³⁺:Lu₂O₃ レーザーの構成を示す。各実験での変更点は埋め込み表記した。励起光源には波長 1.6 μm 帯、エミッタサイズ $1 \times 95 \mu\text{m}$ の LD を用い、水

冷で 12°C程度に保っている。最大励起出力は 1 つの LD の場合 3.5 W、2 つの LD を偏光結合した場合には 4.7 W 程度が得られる。利得媒質中で約 63×73 μm 程度に集光されている。2.3 節の式を用いると、レーザー発振時の利得媒質付近でのビーム径は 72×78 μm 程度であり、励起光とのモードマッチは十分に取れると判断した。利得媒質には、結晶長 4 mm、2.3 at.% 添加の Tm³⁺:Lu₂O₃ と結晶長 4 mm のものを励起光に対しブルースター角に配置した。M1 と M2 は曲率半径 ±100 mm の励起凹面鏡であり、ブルースター入射による非点収差を補償する角度(2.3 節より 5.3°)で配置している。連続発振実験の他にモード同期実験を行い、その時は曲率半径 300 mm の凹面鏡(M3)と分散補償鏡(CM, GDD~1000 fs²)と SESAM(飽和フルエンス 70 μW/cm²、変調深さ 1.2%)を用いた。

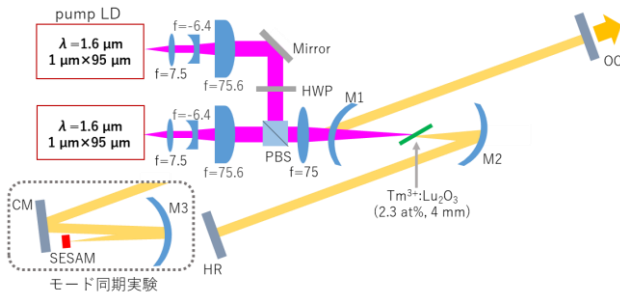


図 8. Tm³⁺:Lu₂O₃ レーザー実験構成

3.2. 実験結果

図 9 に 2 つの LD で励起した時の Tm³⁺:Lu₂O₃ レーザーの CW 発振実験と SESAM を用いたモード同期実験の出力特性を示す。

取り出し 1%、3% の時、4.1 W 励起時に発振波長 2065 nm でそれぞれ最高出力 301 mW と 440 mW を得た。この時のスロープ効率 は 11% と 13% であった。励起パワーが 3.5 W 超えると出力の頭打ちが確認された。利得媒質には図 1(b) で示したような、波長による吸収断面積の変化が存在する。励起 LD の長波長シフトに

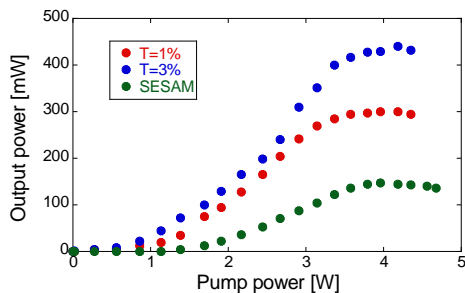


図 9. Tm³⁺:Lu₂O₃ レーザー出力特性

より、励起波長が吸収ピークから外れたことで出力が制限されたと考えられる。また、SESAM 挿入時には、取り出し 1% で最高出力 150 mW を得たが、モード同期は得られなかった。前述したように、安定したソリトンモード同期に必要な共振器内パルスエネルギーの閾値 $E_{p,c}$ は式(14)で表され、本実験でのパラメータ(表 2)を用いて計算すると

$$E_{p,c} = \sqrt{F_{sat,L} A_{eff,L} F_{sat,A} A_{eff,A} \Delta R} = 231 \text{ nJ}$$

表 2. SESAM を用いた実験での実施のパラメータ

利得媒質の飽和フルエンス: $F_{sat,L}$ [J/cm ²]	70.1
利得媒質中での実効断面積: $A_{eff,L}$ [cm ²]	3.39×10^{-5}
SESAM の飽和フルエンス: $F_{sat,A}$ [μJ/cm ²]	70.0
SESAM 上での実効断面積: $A_{eff,A}$ [cm ²]	5.51×10^{-5}
SESAM の変調深さ: ΔR [%]	1.20

である。ここで、取り出しを 1%、繰り返し周波数 90 MHz として必要な出力 P は、

$$P = 0.01 \times E_{p,c} f_{rep} = 208 \text{ mW}$$

となる。本研究で用いている Tm 媒質は、SESAM を用いた CW モード同期が盛んにおこなわれている Yb 媒質と比べて一桁程度誘導放出断面積が小さく [13]、飽和フルエンスが高い。そのため必要な共振器内光強度が高い値となっている。今回 SESAM 挿入時の出力が 150 mW であったことから、CW 発振閾値に届いておらず安定した CW モード同期を得られなかったと考えられる。

これについては、さらに励起を上げる、SESAM や媒質内のビーム径をさらに絞る、繰り返し周波数を下げることで共振器内強度を上げる、CW 発振閾値を下げるなどを行うことでモード同期動作を得られる可能性がある。

4. Cr²⁺:ZnS レーザー実験

4.1. 実験構成

図 10 に Cr²⁺:ZnS レーザー実験構成を示す。基本的な共振器構成は前節と同様の系をとっている。利得媒質にはイオン濃度 $5.35 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、結晶長 4 mm の AR コーティングされた Cr²⁺:ZnS 媒質を励起光に対し垂直に配置した。また、取り出しは 1、10、

20、30%で実験を行った。

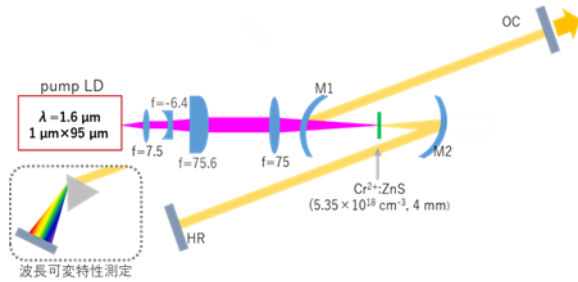


図 10. Cr²⁺:ZnS レーザー実験構成

4.2. 実験結果

図 11 と表 3 に Cr²⁺:ZnS レーザーの出力特性と波長可変特性の結果を示す。今回 1 つの LD で励起し、取り出し効率 1、10、20、30% で CW 発振実験を行った。2.4 W 励起時にそれぞれ発振波長 2280 nm 付近で最高出力 182 mW、643 mW、705 mW、520 mW を得た。スロープ効率は取り出し効率 1% 時に 11%、そのほかでは 44~47% であった。波長可変特性は、それぞれの取り出しで可変幅はあまり変わらず、取り出し 1% 時に 2002~2303 nm の波長可変が確認された。

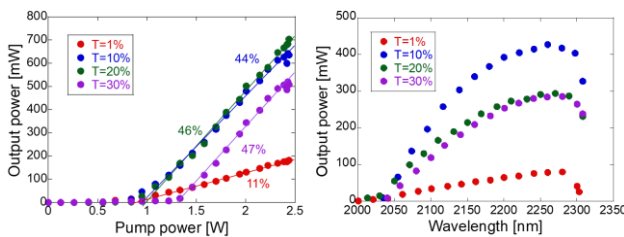


図 11. Cr²⁺:ZnS レーザーの(a)出力特性、(b)波長可変特性

表 3. Cr²⁺:ZnS レーザーの結果まとめ

取り出し [%]	最高出力 [mW]	スロープ効率 [%]	発振波長 [nm]
1	182	11	2283
10	643	44	2288
20	705	46	2284
30	520	47	2279

ここで、蛍光スペクトルに対して波長可変特性が制限されていることについて考える。短波長側については、Cr 利得媒質についての先行研究でしばしば報告されている再吸収の影響によるものと考えられる。長波長側については、使用したミラーセットが Tm レーザーの時と同様のものであったため、反射帯域外であったことが原因である。これについては、下図 12 に示す。

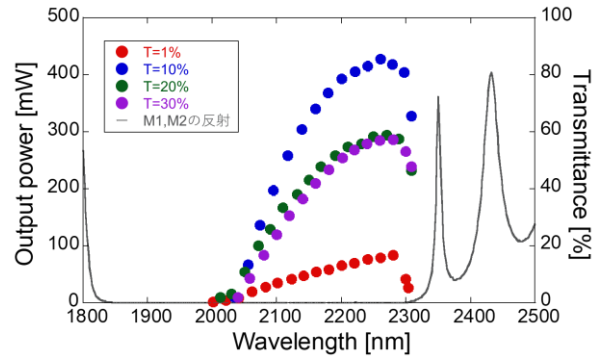


図 12. 波長可変特性と M1, M2 の反射率

5. まとめ

波長 1.6 μm 帯 LD 励起 Tm³⁺:Lu₂O₃ レーザーと Cr²⁺:ZnS レーザーを開発した。

Tm³⁺:Lu₂O₃ レーザーでは CW 発振状態で 3% 取り出し時に発振波長 2065 nm で最高出力 440 mW を得た。SESAM を用いたモード同期は得られていない。SESAM 上でより集光できるように M3 の曲率半径を小さくすることや、LD の偏光結合励起光学系の調整をすること、繰り返し周波数を下げるなどの改良によりモード同期の実現が見込まれる。

Cr²⁺:ZnS レーザーでは、取り出し 20% 時に、2.4 W 励起で発振波長 2284 nm、最高出力 705 mW を得た。スロープ効率は 48% であった。波長可変幅は 2013~2308 nm が得られた。十分な出力と波長可変特性が得られ、SESAM やカーレンズを用いたモード同期の実現が見込まれることが分かった。

6. 参考文献

- [1] Philipp. Koopmann, "Thulium- and Holmium-Doped Sesquioxides for 2 μm Lasers," PhD thesis, University of Hamburg (2012)
- [2] Philipp Koopmann, et al., "Efficient diode-pumped laser operation of Tm:Lu₂O₃ around 2 μm", Optics Letters, **36**, 948-950 (2011)
- [3] T. Sorokina, et al., "Continuous-wave tunable Cr²⁺:ZnS laser", Applied Physics B, **74**, 607-611 (2002).
- [4] ヤリーヴーイー著, 多田邦雄, 神谷武志訳, 石川卓哉, 板谷太郎, 伊藤文彦, 岡田至崇, 鎌田憲彦, 土屋正弘共訳, 中野義昭, 中林隆志, 林秀樹, "光エレクトロニクス基礎編", 丸善出版 (2010)
- [5] 三沢和彦, 芦原聡, "工学系のためのレーザー物理入門", 講談社 (2020)
- [6] Herwig W et al., "Astigmatically Compensated Cavities for CW Dye Lasers", IEEE Journal of quantum electronics, **QE-8**, 373 (1972)
- [7] C. Hönninger, et al., "Q-switching stability limits of continuous-wave passive mode locking", J. Opt. Soc. Am. B, **16**, 46-56 (1999)