

Yb 添加 CaF₂ 結晶を用いたモード同期レーザーの開発

白川研究室 中村 聡

1. はじめに

超短パルスレーザーは共振器内の縦モードの間隔と位相関係をそろえるモード同期によって得られるが、その特徴として高いピークパワーと短いパルス幅を持つ。そのため、難加工材料の加工や非熱加工、微細加工など様々な応用があり、現在も盛んに研究が行われている。その中でも特に、Yb 添加固体利得媒質を用いた研究が注目を集めている。Yb 添加固体利得媒質は母材に Yb³⁺イオンを添加した利得媒質である。この Yb³⁺イオンはエネルギー準位が2つしかないため、励起状態での吸収やアップコンバージョンなどのレーザー発振に有害な影響が少ない。また、レーザー発振はシュタルク効果によって分裂した準位間で行われるため量子欠損が少なく、高効率かつ高出力のレーザー発振が可能である。本研究では、数ある Yb 添加利得媒質の中でも、高い熱伝導率と広いスペクトル幅をもつ Yb:CaF₂ に着目し、単結晶とセラミック媒質を用いて超短パルスレーザーの開発を行った。Yb:CaF₂ は上記のような超短パルスレーザーの発振に適した特性を持つ反面、誘導放出断面積の小ささや非線形屈折率の低さから、これまで高輝度な励起光源を用いての研究がされてきた。2009 年には励起光源としてファイバー結合 LD を用い、可飽和吸収体である半導体過飽和吸収ミラー (SESAM) アシストカーレンズモード同期によりパルス幅 99 fs、平均出力 380 mW の結果が報告されており [1]、2013 年にはファイバーレーザー励起によるカーレンズモード同期によりパルス幅 48 fs、平均出力 2.7 W の結果が報告されている [2]。本研究では励起光源にレーザーチップそのも

のであるブロードストライプ LD を用いることで、より安価で単純な構成でモード同期レーザーを開発した。

2. 原理

2.1 Yb:CaF₂ の特徴

Yb:CaF₂ の母材であるフッ化カルシウムの結晶構造は螢石型立方晶構造である。Ca²⁺ が面心立方型の配置になっており、その四面体間隙に F⁻ が配置されている単純な構造であることから高い熱伝導率を持っている [3] (~10.7 Wm⁻¹K⁻¹ [4])。このフッ化カルシウムに Yb³⁺ をドーピングしたものが Yb:CaF₂ である。Yb:CaF₂ は置換イオン (Ca²⁺) と添加イオン (Yb³⁺) の価数が異なることから、構造内で 2 量体、3 量体、6 量体のクラスターを形成する [5]。このような現象をクラスタリングと呼ぶ。クラスターの分布は Yb³⁺ の添加濃度によって異なり、添加濃度が 0.2% 以下ではクラスターは形成されず孤立イオンのみが存在するが、0.2% を超えるとクラスターが形成され始める。添加濃度が 0.2~2% の間では孤立イオンとクラスターの両方が存在するが、添加濃度が 2% を超えると構造内の Yb³⁺ はすべてクラスターを形成する。構造内にクラスターが形成されることで結晶場が複雑化し、スペクトルが広くなだらかになる。図 1 に Yb:CaF₂ 単結晶の吸収スペクトルと蛍光スペクトルを示す [6]。蛍光スペクトル幅は約 70 nm であり、他の立方晶の媒質である YAG (~10 nm [7]) や Lu₂O₃ (~12 nm [8]) と比べると例外的に広い値であることがわかる。

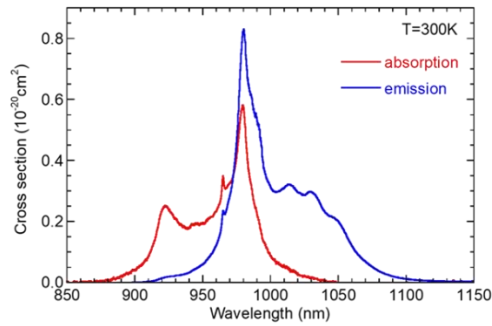


図1 Yb:CaF₂単結晶の吸収・蛍光スペクトル[6]

2.2 モード同期

モード同期とは共振器内に存在する縦モードの間隔と位相をそろえ、光の重ね合わせの原理を利用することでパルスを発生させる手法である。モード同期の概念図を図2に示す。

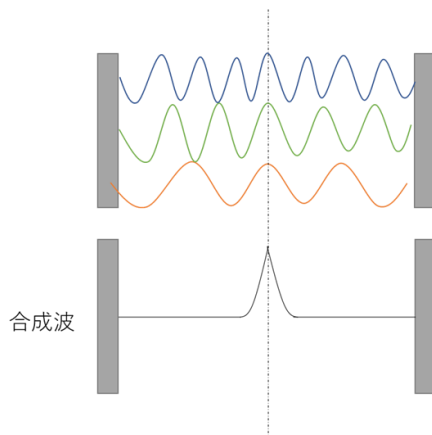


図2 モード同期の概念図

モード同期の手法は大別して2つの種類に分類される。1つ目は能動モード同期である。能動モード同期は、共振器の外部に音響光学変調器 (Acoustic-Optical Modulator, AOM) や電気光学変調器 (Electric-Optical Modulator, EOM) などの変調器を置き、共振器長によって結滞される繰り返し周波数に等しい変調信号を与えることによって強制的にモード同期を引き起こす手法である。能動モード同期によって生成されるパルス幅は変調器の応答速度によって制限されてしまうため一定以下の短パルス動作を実現するのは困難である。

2つ目の手法は受動モード同期である。受動モード同期は共振器内部にある素子の非線形光学効果

を用いてモード同期を行う手法である。外部素子を使用せず、モードロッカーが共振器内の光強度に依存して自発的に変調が生じるため応答速度が速く fs スケールのパルス幅を持ったパルスを生成できる。代表的なモードロッカーは半導体可飽和吸収鏡 (Semiconductor Saturable Absorber Mirror, SESAM) やカー媒質が挙げられる。

本研究ではパルス幅 fs スケールのパルスを生成するため能動モード同期を利用してモード同期を行った。

2.3 SESAM モード同期

SESAM は入射光の強度によって異なる反射率を持つという特性がある。強度の強い光に対しては透過体として働き、強度の弱い光に対しては吸収体として働くことで損失変調を与えモード同期を実現する。SESAM の概略図を図3に示す。

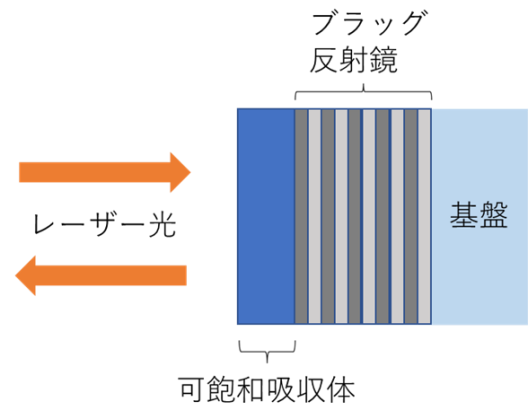


図3 SESAM 概略図

SESAM は図7に示したように可飽和吸収体とミラーが一体となった光学素子である。強度の弱い光は可飽和吸収体層に吸収されるためミラー層にまで光が到達しない。一方で強度の強い光は可飽和吸収体の吸収が飽和することで吸収されずミラー層にまで到達する。SESAM のミラー層は2種類の反射層から成るブラック反射鏡となっている。ブラック反射の条件は格子面間隔を d 、レーザー光の波長を λ 、任意の整数を n とすると(1)で与えられる。

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (1)$$

(3.1)からわかるように位相のそろった光はブラック反射層によって強め合い、パルス光として反射される。このように、強度の強さによる反射率の変化とブラック反射を利用することでモード同期が達成される。SESAM モード同期はセルフスタートが可能であるという利点があるがダメージに弱く、意図しないQスイッチモード同期動作や SESAM 上のビーム径の大きさに注意を払う必要がある。

2.4 カーレンズモード同期(KLM)

KLM はカー媒質の非線形効果である光カー効果を利用してモード同期を実現する手法である[9]。線形屈折率を n_0 、非線形屈折率を n_2 、光強度を $I(x,y)$ とすると、光カー効果によってカー媒質の屈折率 $n(x,y)$ は(2)に従って変化する。

$$n(x,y) = n_0 + n_2 I(x,y) \quad (2)$$

(3.2)は光強度が大きいほどカー媒質の屈折率が大きくなることを示している。図4にTEM₀₀のガウシアンビームが入射した場合の動作を示す。ガウシアンビームがカー媒質に入射したとき、ビームの中心ほど光強度が高くなるため、カー媒質の屈折率はビームの光軸に近づくにつれ大きくなる。その結果、カー媒質の屈折率分布が凸レンズ型になり、強度の強い光ほど自己収束する。自己収束した光に変調を与えることによってKLM が得られる。このようにKLM にはモード同期に特別な素子を使用しないため応答速度が速く、よりパルス幅の短いパルスを生成することができる。

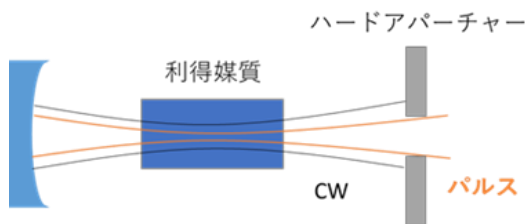


図4 KLM の概略図

3. 実験結果

3.1 SESAM モード同期実験

図5に SESAM モード同期実験に使用した実験系を示す。

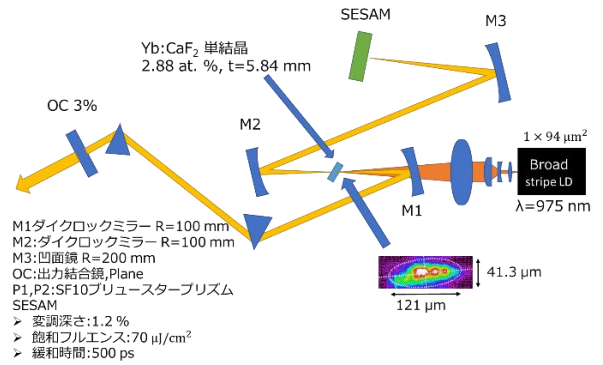


図5 SESAM モード同期実験系

ポンプ光源としてエミッタサイズ $1 \times 94 \mu\text{m}^2$ 、中心波長 975 nm のブロードストライプLDを用い、3枚のレンズでコリメートし、 $f=70 \text{ mm}$ の凸レンズで $41.3 \times 121 \mu\text{m}^2$ に集光した。分散補償素子として、SF10 ブリュースタープリズムペアP1, P2を頂点間距離 400 mm でOCアームに挿入した。使用した試料はYb添加量 2.88 at. \% 、厚さ 5.84 mm の単結晶である。

共振器1周当たり約 -3000 fs^2 のGDDを与えたときモード同期がセルフスタートした。このときの発振スペクトルと自己相関波形を図6に示す。

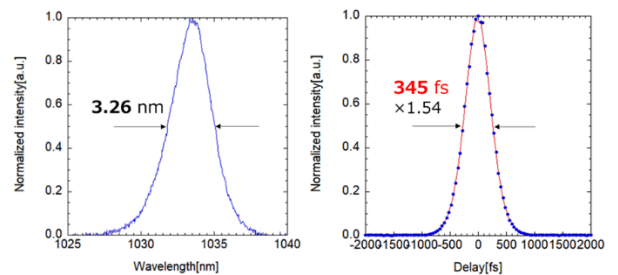


図6(a) 発振スペクトル (b) 自己相関波形

発振スペクトルは半値全幅で 3.26 nm 、パルス幅は 492 fs 、平均出力 350 mW (8.6 W 励起)の結果が得られた。このときの時間帯域幅積は 0.316 であり sech^2 形のフーリエ限界パルスに近い値が得られた。

3.2 KLM 実験

図7に本研究で作成した KLM 実験系を示す。

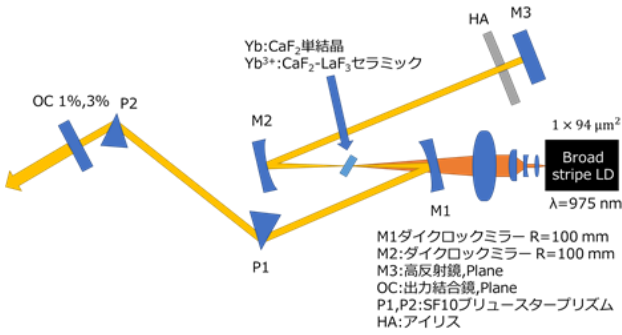


図7 KLM 実験系

KLM 実験系は SESAM モード同期で使用した径の M3 を凹面鏡から高反射鏡に置き換えたものである。実験に使用した試料は Yb 添加量 2.88 at. %、厚さ 5.84 mm の単結晶、Yb 添加量 2 at. %、La 添加量 3 at. %、厚さ 3.1 mm のセラミック試料を 2 枚重ね合わせたものである。分散補償を最適化させたのち、M2 を手で押すことで KLM 動作に移行した。単結晶では OC の透過率が 3% と 1% のものを使用したときの結果、セラミックでは OC の透過率が 1% のものを使用したときの結果が得られた。

単結晶の結果

OC の透過率 3% のものを使用時、共振器 1 周当たり -2200 fs² の分散を与えたとき KLM を達成した。このときの発振スペクトルと自己相関波形を図8に示す。

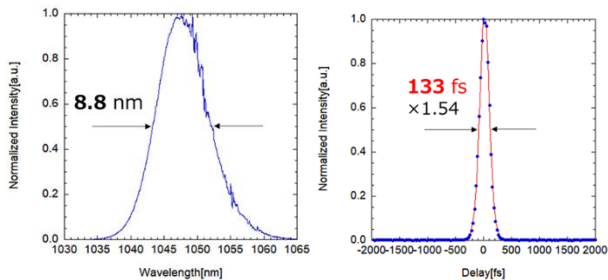


図8(a) 発振スペクトル (b) 自己相関波形
(OC3%、単結晶)

発振スペクトルは半値全幅で 8.8 nm、パルス幅は 133 fs、平均出力 510 mW(10.2 W 励起)の結果が得られた。このときの時間帯域幅積は 0.320 である。

OC の透過率 1% のものを使用時、共振器 1 周当たり -900 fs² の分散を与えたとき KLM を達成した。このときの発振スペクトルと自己相関波形を図9に示す。

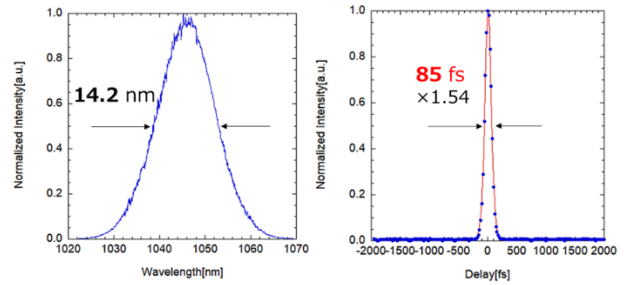


図9(a) 発振スペクトル (b) 自己相関波形
(OC1%、単結晶)

OC の透過率を下げたことにより共振器パワーが向上し、自己位相変調の効果が顕著に表れたことから発振スペクトルは半値全幅で 14.2nm まで広がった。パルス幅は 85 fs、平均出力 220 mW(12.2 W 励起)の結果が得られた。このときの時間帯域幅積は 0.331 である。

セラミックの結果

OC の透過率が 1% のものを使用時、共振器 1 周当たり -900 fs² の分散を与えたとき KLM を達成した。このときの発振スペクトルと自己相関波形を図10に示す。

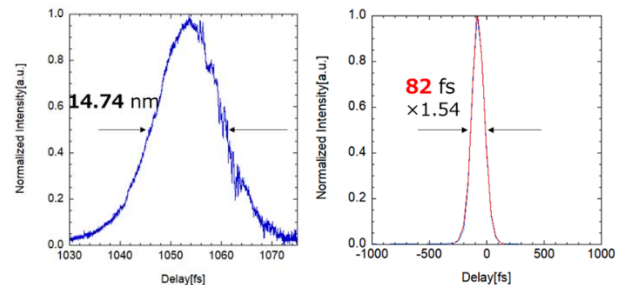


図10(a) 発振スペクトル (b) 自己相関波形
(OC1%、セラミック)

発振スペクトルは半値全幅で 14.74 nm、パルス幅は 82 fs、平均出力 132 mW(8.9 W 励起)の結果が得られた。このときの時間帯域幅積は 0.331 であった。

4. 考察

4.1 単結晶 KLM の発振波長について

図 11 に今回 Yb:CaF₂ 単結晶 KLM で得られた発振スペクトルと Yb:CaF₂ の吸収・蛍光スペクトルを比較した図を示す。

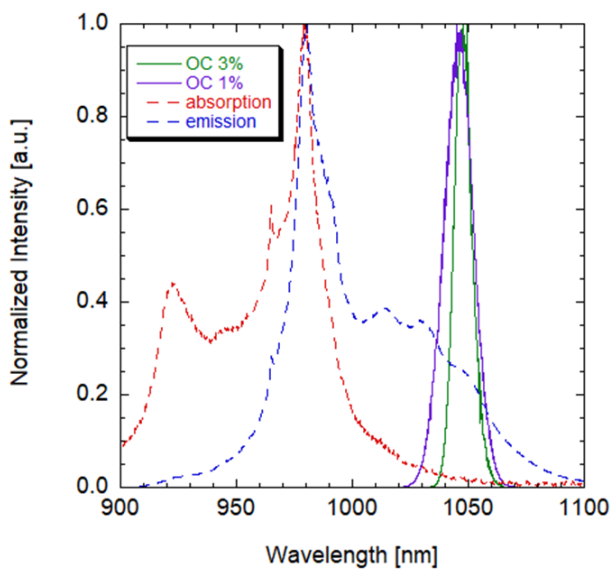


図 11 Yb:CaF₂ 単結晶の吸収・蛍光スペクトルと発振スペクトルの比較

図 11 より今回 KLM 実験で得られた結果は蛍光スペクトルの長波長側での発振だったことがわかる。また、誘導放出断面積は 1060 nm 以降で急激に下がることも見て取れる。このことから、発振スペクトルをさらに広げるためには、短波長側にスペクトルを拡張していく必要がある。そのために必要なのは、高利得、高損失状態での KLM 発振である。図 12 に文献[10]を参照し算出した小信号利得と、共振器全体の損失に対する閾値利得を示す。図 12 より、共振器全体の損失が 10%であるとすると、発振波長は 1050 nm 付近、20%であるとすると、発振波長は 1040 nm 付近、30%であるとすると、発振波長は 1030 nm 付近であることがわかる。つまり、共

振器全体の損失が増えると、より短波長側で発振することがわかる。従って、OC の透過率を上げることによって高損失状態にし、励起光源を改善することによって高利得状態を作り出すことによって、発振スペクトルが短波長側へ拡張され、更なる高出力発振と短パルス発振の両立が可能になると考えられる。

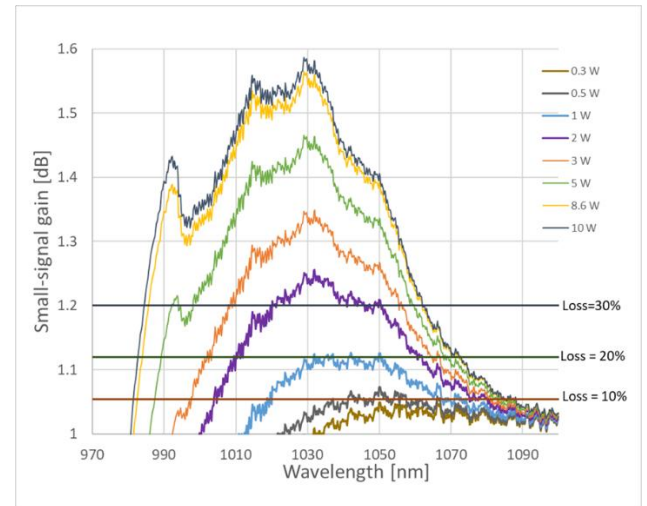


図 12 Yb:CaF₂ 単結晶の小信号利得と閾値利得 (Yb 添加量 2.88 at. %、厚さ 5.84 mm)

4.2 KLM が達成できた要因

本研究で KLM を達成できた要因は主に 2 つある。1 つ目は安定領域の端での動作をさせたことがあげられる。KLM は安定領域の端で動作させると非線形モード変化が大きくなり、達成しやすいという報告がある[11]。一方で、安定領域の端では共振器がより変調に敏感になるため不安定な動作となる。そのため、高い変調を得ようとするとその分ビームのスポットサイズや出力パワーが急激に変化しアライメントの難易度が上がる。したがって、KLM の実現には変調度の高さや安定動作の妥協点を見つける必要がある。本研究では安定領域の端で CW レーザーを発振させ、M2 と結晶ホルダーの位置を変えながら KLM が実現できる点を探した。M1 から結晶までの距離を L2、結晶から M2 までの距離を L3 とすると本研究で作成した実験系の安定領域は図 13 のようになる。

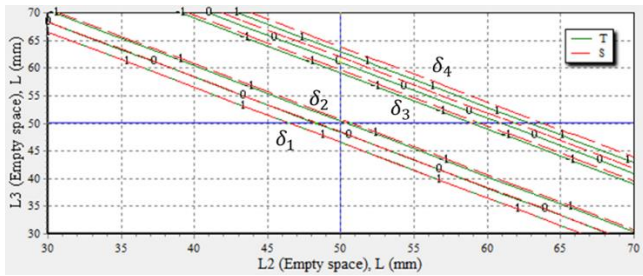


図 13 KLM 実験系の安定領域

安定領域は図のように 2 つの領域に分かれている。そのため安定領域の端は $\delta_1 \sim \delta_4$ の 4 つ存在する。Yb:CaF₂ 単結晶とセラミックで KLM が達成できた場所は δ_3 である。

2 つ目の要因は、結晶を励起光の集光点からずらして配置したことがあげられる。KLM は、利得媒質を M2 または M1 側にずらした場合、集光点を利得媒質の中心に揃えた場合よりも高い変調度を得ることができる[12]。これは非線形屈折率を測定する手法である Z-scan 技術による測定[13]からも明らかである。

結晶をずらす方向は安定領域のどの端で発振しているかによって異なる。図 14 に各安定領域の端ごとの共振器内でのビーム径変化の様子を示す。

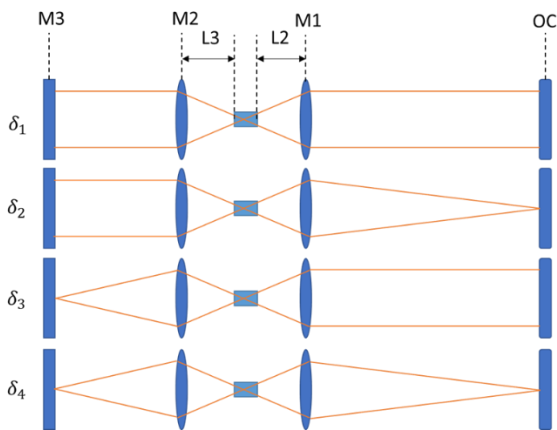


図 14 各安定領域の端ごとのビーム径変化の様子

今回 KLM が得られた δ_3 では、ハードアパーチャを挿入している短腕側ではビームが集光し、プリズム対が挿入されている長腕側ではコリメート光となる。短腕側でビームが集光する場合、KLM を実現するには M2 上でパルス光のビーム径 ω_p が CW 光のビーム径 ω_{cw} よりも大きい必要がある。そのた

め、結晶を M1 側にずらすことでカー媒質透過後のビームの発散角を増大させることで変調を増大させることができる。

5. まとめと今後の課題

Yb:CaF₂ 単結晶、セラミックともに世界で初めて LD 直接励起によりカーレンズモード同期を実現した。単結晶では OC の透過率 3% のものを使用時、平均出力 510 mW (10.2 W 励起)、パルス幅 133 fs の結果を得た。1% の場合では平均出力 220 mW (12.2 W 励起)、パルス幅 85 fs の結果を得た。セラミックでは OC の透過率 1% のものを使用時、平均出力 132 mW (8.9 W 励起)、パルス幅 82 fs の結果を得た。

今後の課題として、励起光源の改善し、より透過率の大きい OC を使用することで高利得、高損失状態で KLM を実現することで、高出力と短パルス発振の両立を図る。また、セラミック KLM では 2 枚の試料を重ね合わせて配置しているため、試料の境界面での散乱が生じている。そこでより厚い 1 枚のセラミック試料で KLM を実現させることで更なる高出力化を図る。

参考文献

- [1] F. Friebel *et al.*, Opt. Lett. **34**, 1474 (2009).
- [2] P. Sévillano *et al.*, ASSL. AF3A.6 (2013).
- [3] R. Gaumé *et al.*, Appl. Phys. Lett. **83**, 1355 (2003).
- [4] F. Druon *et al.*, Opt. Mater. Express **1**, 489 (2011).
- [5] A. Lyberis *et al.*, Opt. Mater. **34**, 965 (2012).
- [6] J. Koerner *et al.*, Opt. Soc. Am. B **29** 2493 (2012).
- [7] H. W. Bruesselbach *et al.*, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron **3**, 105 (1997).
- [8] K. Petermann *et al.*, J. Lum. **87**, 973 (2000).
- [9] S. Yefet *et al.*, Appl. Sci. **3**, 694 (2013).
- [10] H. M. Robert *et al.*, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **1**, 2 (1995).
- [11] V. Magni *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **12**, 476 (1995).
- [12] T. Brabec *et al.*, Opt. Soc. Am. B **10**, 1029 (1993).
- [13] Y. Senatsky *et al.*, Laser Phys. Lett. **1**, 500 (2004).