

# Nd<sup>3+</sup>添加 Ba(Zr, Mg, Ta)O<sub>3</sub> セラミックレーザーの評価

白川晃研究室 B4 布施純一

## 1. 序論

近年、超短パルスレーザーは工業や医療等様々な分野に用いられ、超短パルス用として広い利得帯域幅をもつ媒質の研究が盛んに行われている。Ba(Zr,Mg,Ta)O<sub>3</sub> (BZMT, ルミセラ<sup>®</sup>Type-Z) は(株)村田製作所との共同研究で開発した透光性セラミック材料である。この材料は Disordered 構造であるため、添加された希土類イオンは広い利得帯域を示し、超短パルスレーザー用材料として非常に有望である。本研究ではこの BZMT に Nd<sup>3+</sup>イオンを添加した Nd<sup>3+</sup>:BZMT を用いて、レーザー媒質としての特性を評価する。

## 2. 原理

### 2.1. BZMT

BZMT は Ba(Mg,Ta)O<sub>3</sub> 系のペロブスカイト構造を主結晶相としている。ペロブスカイト構造とは、図 1 に示すように ABX<sub>3</sub> という構造をもつ。A サイトの陽イオンと X サイトの陰イオンが同程度の大きさを有し、この A サイトと X サイトから構成される立方晶系単位格子中に A サイトよりも小さいサイズの陽イオンが B サイトに位置する。

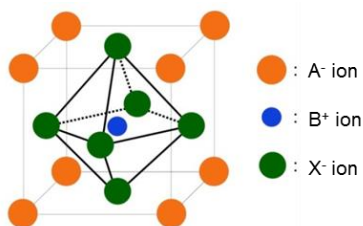


図 1.ペロブスカイト構造

Ba(Mg, Ta)O<sub>3</sub> 系材料の結晶構造の模式図を図 2 に示した。この結晶は、図 2(a) に示したように六方晶であり、B サイトの Mg と Ta が 1:2 に規則配列した規則型構造をとっている。六方晶は光学的 1 軸性結晶であるため、その多結晶体であるセラミックでは不透明から半透明となる。しかし、B サイトの一部を 4 価の陽イオンで置換することで上記の規則配列が崩れ、図 2(b) に示したように B サイト内のイオンがランダム配列した無秩序構造となり、六方晶から光学的等方体である立方晶へと結晶構造が変化する。その結果、BZMT セラミックでは、光学異方性がなくなり透明化が可能となった

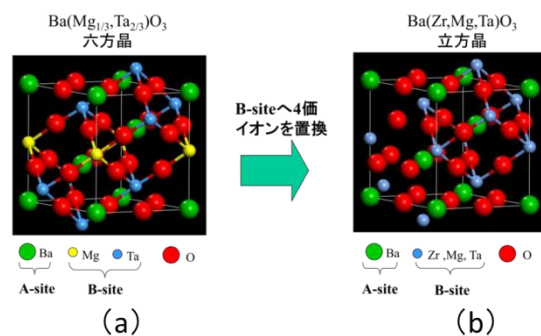


図 2. BMT および BZMT の結晶構造

### 2.2. Nd<sup>3+</sup>:BZMT

BZMT の特徴として、製造過程において B サイトのイオン比率を変化させることで Nd<sup>3+</sup>イオンを A サイト、B サイト、A&B サイトへ選択的に置換が可能である。表 1 にはそれぞれのサイトに同程度の濃度の Nd<sup>3+</sup>イオンを添加した場合の量子効率を示す。

表 1. 1 mol. % Nd<sup>3+</sup>:BZMT の量子効率

置換サイト(1 mol. %)	量子効率(%)
A – site, Nd <sup>3+</sup> :BZMT	59
B – site, Nd <sup>3+</sup> :BZMT	41
A & B – site, Nd <sup>3+</sup> :BZMT	25.5

この結果より、本研究では量子効率の最も高い A サイトへ 1 mol. % の Nd<sup>3+</sup> を添加した 1 mol. % Nd<sup>3+</sup>:BZMT を使用した。

本実験に用いた 1 mol. % Nd<sup>3+</sup>:BZMT の蛍光スペクトルを図 3 に示す。比較のため一般的に用いられる媒質である Nd<sup>3+</sup>:YAG の同濃度での蛍光スペクトルも示した。2 つの利得帯域幅の半値全幅を比較すると Nd<sup>3+</sup>:BZMT は ~30 nm であり、これは Nd<sup>3+</sup>:YAG の 30 倍以上である。パルス幅と利得帯域幅はフーリエ共役の関係にあるため、利得帯域幅が広ければフーリエ限界パルス幅は狭くなる。これより 1 mol. % Nd<sup>3+</sup>:BZMT を用いたレーザーは同濃度の Nd<sup>3+</sup>:YAG を用いた場合よりも狭いパルス幅が得られることが期待される。

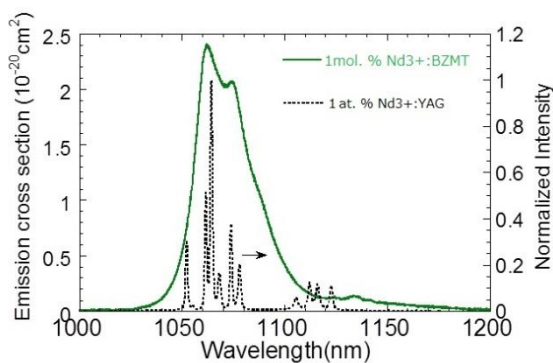


図 3. 1 mol. % Nd<sup>3+</sup>:BZMT の蛍光スペクトル

### 3. 実験・結果

#### 3.1. Nd<sup>3+</sup>:BZMT 連続波発振実験

実験系を図 4 に示す。励起光源として波長 807 nm のファイバー結合型半導体レーザーを用いた。共振器は BZMT 端面の HR と曲率 200 mm の出力透過鏡によって構成され、計算上試料端面での集光径は 250 μm となる。使用した Nd<sup>3+</sup>:BZMT は先行実験の結果をもとに改良を行って作製したロッド状の試料である。本実験において共振器の最適化を行った結果、図 5 に示したように、O.C.=10 % において最大出力 1.7 W、出力効率 38.1 % と先行研究の結果を大幅に上回る結果が得られた。

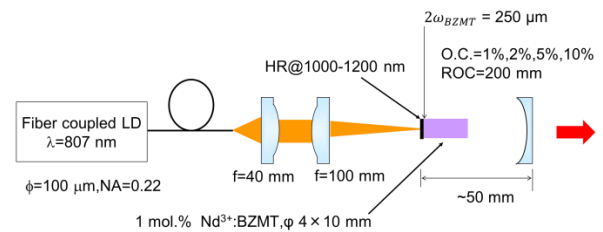


図 4. 1 mol. % Nd<sup>3+</sup>:BZMT の連続発振実験系

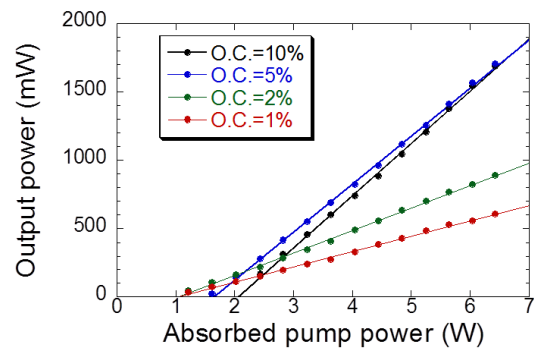


図 5. 1 mol. % Nd<sup>3+</sup>:BZMT の入出力特性

出力効率が向上した要因を検証するため図 6 に示すように、各出力透過鏡の透過率としきい値から、試料の共振器内損失を見積もったところ、3.8 %/cm と求められた。先行研究に用いた試料の共振器損失は 3 ~ 4% であったため、損失の減少は無いと判断できる。

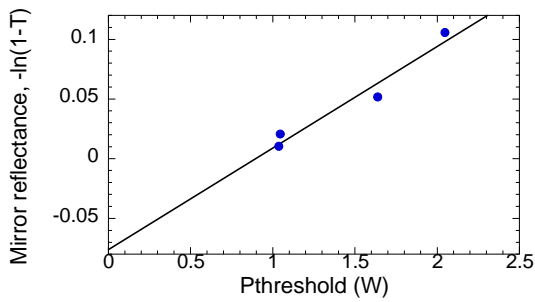


図 6.共振器内損失

次に励起光とレーザー光とのモードマッチの検証を行った。図 7 は励起光の集光点でのビームプロファイルである。励起光の集光径が計算上  $250 \mu\text{m}$  に対し、実測値は  $400 \mu\text{m}$  程もある事がわかった。先行研究では曲率  $100 \text{ mm}$  の出力透過鏡を用いていたのに対し、本実験では曲率  $200 \text{ mm}$  の出力透過鏡を用いた。これによりモードマッチが改善し、出力効率が向上したと考えられる。

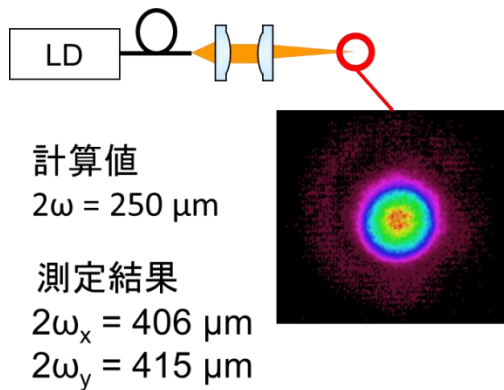


図 7.励起光のビームプロファイル

また、試料端面に対する集光点の位置を変えたところ、同一励起パワーにおいて図 8 に示すような出力の違いがみられた。この結果と、試料の冷却方法 (図 9) から、試料の熱伝導率と冷却効率によって試料上で温度勾配が生じ、出力にばらつきが出たのではないかと考えた。そこで、試料を冷

やす冷却水の温度を  $10 \text{ }^\circ\text{C}$  から  $35 \text{ }^\circ\text{C}$  まで変化させて出力を測定したところ、図 10 のように変化が見られないことが分かった。これにより、温度勾配によるものではないと判断できる。また、結晶を固定する角度を変化させ、集光位置をずらしたところ、図 8 とは違った出力特性が得られたため、熱レンズ効果の可能性も低いと考えられる。以上のことから、これは結晶の不均一性によるものと断定した。

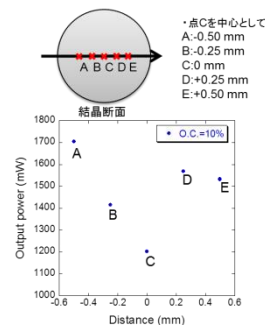


図 8.集光位置による出力の特性

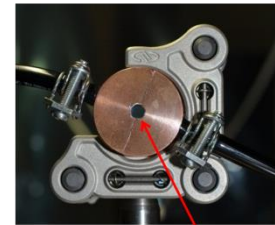


図 9.冷却ホルダーの構造

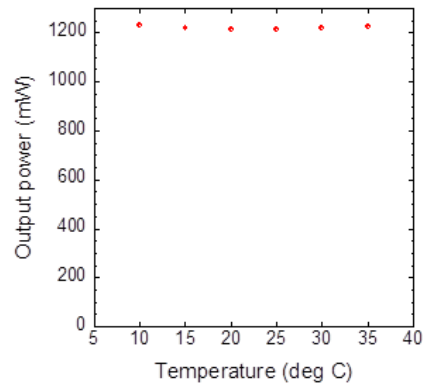


図 10.冷却温度による出力特性

### 3.2. 半導体可飽和吸収鏡を用いた $\text{Nd}^{3+}:\text{BZMT}$ 受動モード同期発振実験

実験系を図 11 に示す。励起光源と試料は連続発振実験と同様とした。共振器は試料端面の HR と SESAM で構成され、試料上での集光径は実測で  $180 \mu\text{m}$  である。共振器内のビーム径や CW モード同期に必要な共振

器内エネルギーを見積もり、実験を行った。その結果、ロッド形状の BZMT では初めて受動モード同期発振に成功した (図 12)。しかし、スペクトル形状 (図 13) などから連続波成分が残っていると考えられるため、SESAM の変調を深くし、共振器の最適化を行う必要がある。

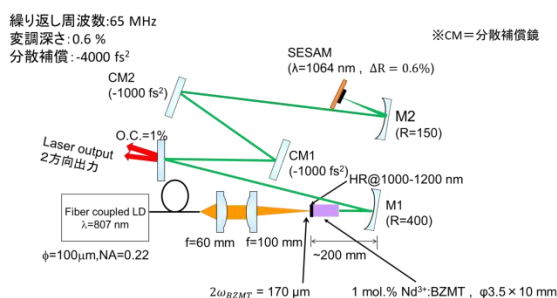


図 12. 1mol.% Nd<sup>3+</sup>:BZMT の受動モード同期実験系

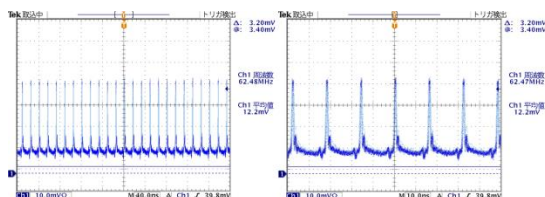


図 13. モード同期時のパルス列

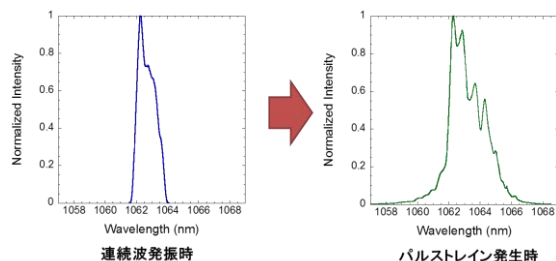


図 14. モード同期時のスペクトル変化

#### 4. まとめ

連続波発振実験ではモードマッチの向上から先行研究よりも高い最大出力 1.7 W、出力効率 38.1% を得ることが出来た。また、結晶の不均一性が確認された。受動モード同期発振実験では、連続波成分が残ったものの、モード同期発振に成功した。

#### 5. 展望

BZMT の更なる高品質化をすすめ、レーザー発振の高効率化をすすめる。また、安定的なモード同期発振のために、共振器の再設計と最適化を行う

#### 6. 参考文献

1. 黒川裕章, 電気通信大学大学院 修士論文
2. 戸倉川正樹, 電気通信大学大学院 修士論文.
3. 中尾博明, 電気通信大学大学院 修士論文
4. 田中伸彦, “透明セラミックス” KEC 情報 No.210. 2009 JUL
5. Amnon Yariv, “光エレクトロニクス 基礎編 原書 6 版” 丸善株式会社
6. W. F. Krupke, M. D. Shinn, J. E. Marion, J. A. Caird, and S. E. Stokowski, “Spectroscopic, optical, and thermomechanical properties of neodymium- and chromium-doped gadolinium scandium gallium garnet,” J. Opt. Soc. Am. B, 3, 102(1986).
7. C. Honninger, R. Paschotta, F. Morier-Genoud, M. Moser, and U. Keller, “Q-switching stability limits of continuous-wave passive mode locking,” J. Opt. Soc. Am. B, 16, 46 (1999).