

# フェムト秒モード同期 Nd<sup>3+</sup>添加 Ba(Zr,Mg,Ta)O<sub>3</sub> セラミックレーザーの研究

1333077 東 祐軌  
主任指導教員 白川 晃

## 1. はじめに

半導体レーザー(LD)直接励起超短パルス固体レーザーは、様々な分野へ応用が可能であり、現在盛んに研究されている。そのようなレーザーのための利得媒質として、Yb<sup>3+</sup>添加材料が多く用いられている。その理由として、Yb<sup>3+</sup>添加材料では 1 μm 帯のレーザーに用いられる遷移が <sup>2</sup>F<sub>7/2</sub> と <sup>2</sup>F<sub>5/2</sub> の 2 つしか存在しないため、ストークス効率が高く、また、励起準位吸収やアップコンバージョンが生じにくく、量子効率も高いということが挙げられる。更に、振動電子遷移によって広い利得帯域幅が得られる。しかし一方で、誘導放出断面積が小さく、再吸収損失が存在するためレーザー発振閾値が高くなってしまったといった問題もある。それに対して Nd<sup>3+</sup>添加材料は 4 準位系であるため、誘導放出断面積が大きく、レーザー発振やモード同期を起こしやすい。また、Yb<sup>3+</sup>添加材料と比較して利得帯域幅は非常に狭いが、母在に不均一広がりを示す材料を用いることで利得帯域幅を広げることができる。その主な例として、Nd<sup>3+</sup>添加ガラスレーザーが挙げられる。ガラスは結晶構造を持たない無秩序構造であるため、不均一広がりにより広い利得帯域幅を示す。しかし低い熱特性と機械特性が、レーザー特性に制限を与えてしまう。そこで近年注目されているのが Disordered crystal である。Disordered crystal は本質的には結晶でありながらガラスのような不均一広がりを示す材料であるため、広い利得帯域幅と高い熱特性、機械特性を持っている。(株)村田製作所によって開発された透光性セラミック Ba(Zr,Mg,Ta)O<sub>3</sub>(BZMT)[1]は、Disordered crystal であり、Nd<sup>3+</sup>イオンを添加することで 30 nm と非常に広い利得帯域幅を示す。また、熱特性と機械特性がガラスよりも高いため(表 1)、超短パルスレーザー用利得媒質として有望であり、我々は研究を続けてきた。

表 1. 機械特性と熱特性

	BZMT	Silica	HAP-4
Thermal conductivity (W/m K)	3.1	1.48	1.023
Thermal expansion coeff. (×10 <sup>-6</sup> /K)	8.9	0.55	8.5
Young's modulus (GPa)	228	70.5	68.8
Thermal shock parameter (W/m)	302	1450	140

我々は 2011 年に A-site に 1 mol.% の Nd<sup>3+</sup> を添加した A-site Nd:BZMT を用いて初めてピコ秒モード同期に成功している[2]。また、光学特性の Nd<sup>3+</sup>イオンの添加するサイト依存性を明らかにした[3]。

今回、材料の高品質化や材料長、共振器構成の最適化によって過去の報告[4]より高効率な連続波(CW)発振と初めてフェムト秒モード同期に成功したので報告する。

## 2. Nd:BZMT の光学特性

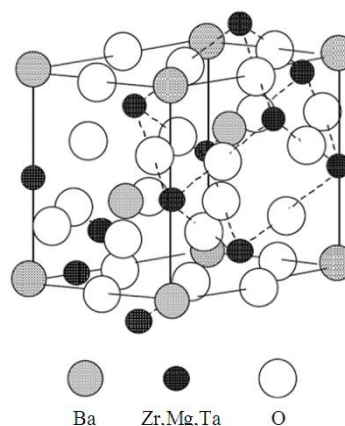


図 1. BZMT の結晶構造

図 1 に BZMT の結晶構造を示す。BZMT は複合ペロブスカイト構造を主結晶層とする透光性セラミックであり、Ba の site (A-site) と、(Zr,Mg,Ta) の site (B-site) の 2 つの site を持つ。Nd<sup>3+</sup> は A-site か B-site、もしくは両 site に添加される。添加 site は B-site のイオンの組成調整によって制御でき、A-site に Nd<sup>3+</sup> を添加した A-site Nd:BZMT が最も高い量子効率を示すことから[3]、本研究でも A-site Nd:BZMT を用いた。B-site に添加された Nd<sup>3+</sup> イオンはイオン間の距離が近いこと、イオン同士の相互作用によって輻射を伴わない遷移が生じるため量子効率が低下してしまう。図 2 に 1 mol.% A-site Nd:BZMT の吸収、蛍光スペクトルを示す。吸収ピークは 808 nm にあり、広い吸収幅を持つため波長安定化 LD を用いる必要はない。また、蛍光ピークは 1062 nm に位置し、前述したとおり半値全幅は 30 nm と非常に広い。この利得帯域幅から計算されるフーリ

エ限界パルス幅は約 40 fs である。

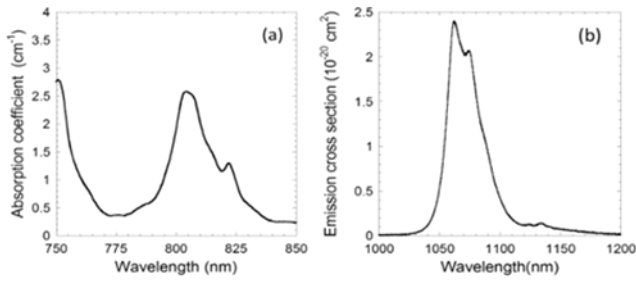


図 2. 1 mol.% A-site Nd:BZMT の(a)吸収スペクトル、  
(b)蛍光スペクトル

また、誘導放出断面積も大きく ( $2.4 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  @1062 nm)、不均一広がりを示す材料に  $\text{Nd}^{3+}$  イオンを添加することで広い利得帯域幅と高い誘導放出断面積を同時に実現できていることが分かる。

### 3. 使用した試料

連続波(CW)発振実験及びモード同期発振実験のために本研究では粒径の異なる 3 種類の A-site Nd:BZMT セラミック (試料 1,2,3) を作製した。それぞれの試料の粒径や量子効率を表 2 にまとめた。それぞれの試料の量子効率は積分球を用いて蛍光スペクトルから測定し、どの試料についても約 60%であった。一般的な  $\text{Nd}^{3+}$  添加材料である Nd:YAG の量子効率が 60%であるので、それと比較すると小さい値となっている。このことより、一部の  $\text{Nd}^{3+}$  イオンが B-site に添加されてしまっているのではないかとということが量子効率から推測できる。光学顕微鏡図を図 3 にまとめた。試料 3 について、粒径が大きく見えるが、これは他の試料とはエッチングの条件が異なるためである。実際に他の試料と差異は無い。

表 2. 各試料の平均粒径と量子効率

	試料 1	試料 2	試料 3
平均粒径( $\mu\text{m}$ )	20	10	40
量子効率 (%)	61	61	60



図 3. 各試料の光学顕微鏡図

### 4. CW 発振

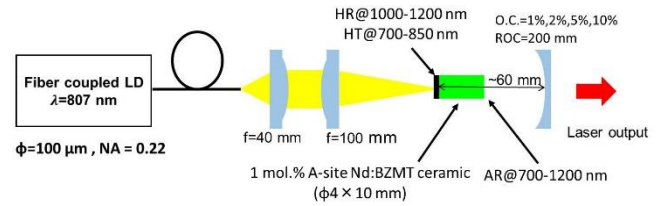


図 4. CW 発振実験配置図

図 4 に CW 発振実験配置図を示す。励起光源には動作波長 808 nm のファイバー結合 LD を用い、2 枚のレンズによって利得媒質中に直径 250  $\mu\text{m}$  に集光した。利得媒質には、A-site Nd:BZMT セラミック ( $\phi 4 \times 10 \text{ mm}$ ) を用いた。共振器は Nd:BZMT セラミックの励起光側端面の高反射 (HR) コーティングと曲率半径 (ROC) 200 mm の出力透過鏡 (OC) によって構成されている。OC の透過率は結果を比較、考察するため 1%, 2%, 5%, 10% のものを用いた。共振器長は約 60 mm である。励起強度の増加によって試料に熱レンズ効果が発生し励起光とレーザー光のモードマッチが悪化する。この現象を補正するため共振器長は励起強度ごとに適宜変更し、出力が最大となるようにしている。

図 5 にそれぞれの試料で最も高いスロープ効率を示したときの結果を示す。試料 1 では OC 透過率 10% 時に最大出力 1.7 W, スロープ効率 38.1% を得た。この結果は同試料を用いた過去の CW 発振の報告を上回る結果であり、共振器構成の最適化、特にモードマッチの向上に成功したことが分かる。試料 2 では OC 透過率 5% 時に最大出力 800 mW, スロープ効率 20.7% を得た。試料 1 と比較すると最大出力は半分程度となった。この結果については後ほど考察を行う。試料 3 では OC 透過率 10% 時に最大出力 1.5 W, スロープ効率 34.9% を得た。

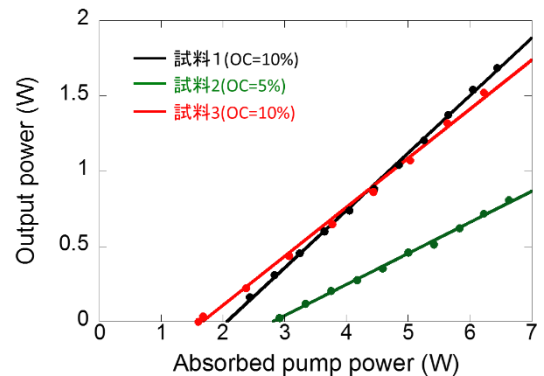


図 5. 入出力特性(CW 発振)

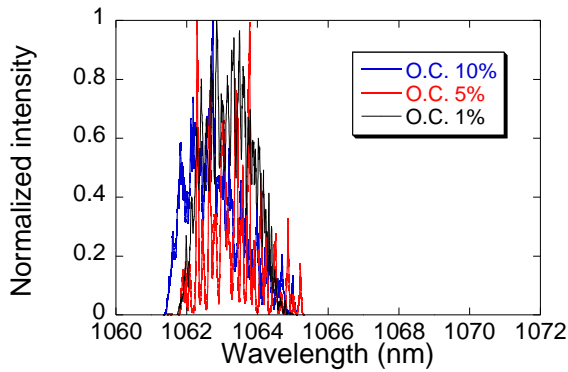


図 6. レーザー発振スペクトル(試料 3)

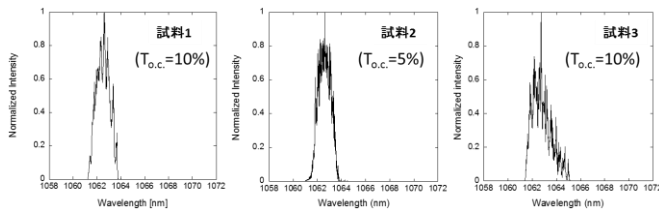


図 7. レーザー発振スペクトル  
(各試料の最大出力時)

また、図 6 に試料 3 のそれぞれの OC 透過率の最大出力時のレーザー発振スペクトルを示す。発振波長はどの場合は 1063 nm であった。OC の透過率、即ち共振器の損失が変化しても発振波長が変化しなかったことより、再吸収損失がないことが分かる。更に、図 7 にそれぞれの試料の最大出力時の発振スペクトルを示す。発振波長は試料によらず 1063 nm であった。励起波長も全ての試料について 807 nm であるので、ストークス効率も全ての試料について等しい。また、共振器長、量子効率もほぼ等しいため、各試料でのスロープ効率の差は材料損失によって変化していることが分かる。特に図 5 より、試料 2 については OC 透過率が 5% であるのにも関わらず、発振閾値が最も高い。つまり試料 2 については他の材料よりも材料損失が大きいことが予想される。試料 3 については、同じ OC 透過率の試料 1 よりも発振閾値が低いので、より高い透過率の OC を用いることで更なる高出力化が可能になると考えられる。

## 5. モード同期発振

試料 1 は実験中に破壊してしまったため、モード同期発振については試料 2 と試料 3 を用いて行ったので以下で報告する。

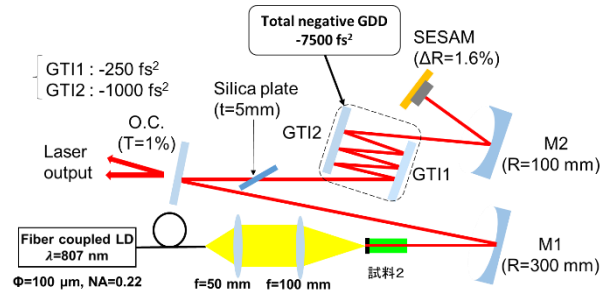


図 8. モード同期実験配置図(試料 2)

図 8 に試料 2 を用いて行ったモード同期発振の実験配置図を示す。励起光源は CW 発振に用いたものと同じであり、2 枚のレンズによって試料 2 に直径 200 μm で集光した。共振器は試料の HR コートとモードロッカーである半導体過飽和吸収鏡 (SESAM) をエンドミラーとして構成している。SESAM の変調深さ 1.6%、非飽和損失 1.4%、緩和時間 1 ps のものを用いた。ソリトンモード同期のために共振器内には分散補償媒質が必要であり、今回は 2 枚の分散補償鏡 (GTI 鏡) を用いた。与えた負分散量は共振器片道あたり  $-3750 \text{ fs}^2$  である。また、モード同期は単一偏光動作でなければならないため、偏光を選択するために 5 mm の silica プレート をブリュースター角で配置した。また、OC は透過率 1% のものを用い、共振器の折り返しミラーになっているため出力は 2 方向出力となっている。

図 9 に入出力特性を示す。シングルパルスの CW モード同期時の最大出力は 78 mW であった。このときの発振スペクトルと SHG 自己相関波形を図 10 に示す。

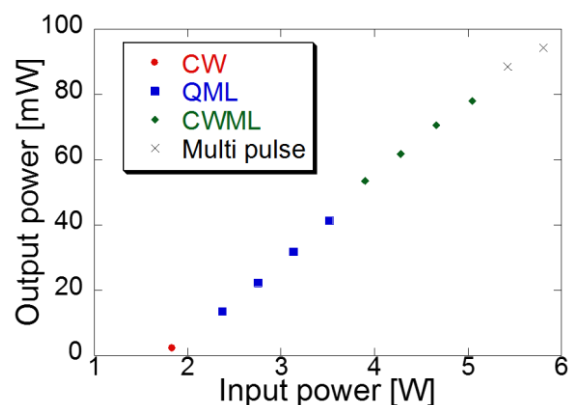


図 9. 入出力特性(モード同期 試料 2)

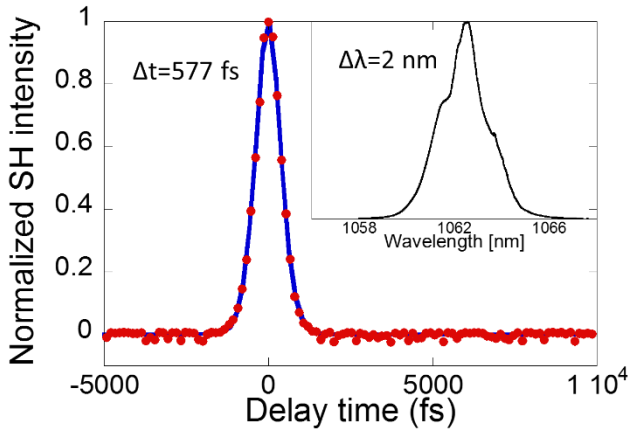


図 10. SHG 自己相関波形と発振スペクトル

パルス幅 577 fs、スペクトル幅 2 nm を得た。この結果は Nd:BZMT を用いた初めてのフェムト秒モード同期である。発振スペクトルを見ると完全な  $\text{sech}^2$  型の形状ではなく、周期的な構造が確認される。この構造からマルチパルス化しているのではないかと考えられたが、構造の間隔より計算されるサブパルスの間隔は 8 ps であったが、SHG 自己相関波形内には確認されなかった。従ってこの構造は材料の不均一広がりによるものでは内科と予想されるが詳細は現在解明中である。過去の報告ではパルス幅は 1.4 ps であったが、今回半以下にパルス幅の短縮に成功した。その要因としては、分散補償の最適化が挙げられる。しかし、分散補償鏡を用いた分散補償では、鏡に反射するたびに一定の負分散が発生するため、与えられる負分散の値は離散的になってしまう。また、レーザー発振中に分散値を変えることができない。そのため、更なるパルス幅の短縮のためには発振させながら連続的に分散値の調整が可能であるプリズム対を用いる必要がある。また、高出力化のためにより CW 発振で高効率であった試料 3 を用いてモード同期を行ったので以下で報告する。

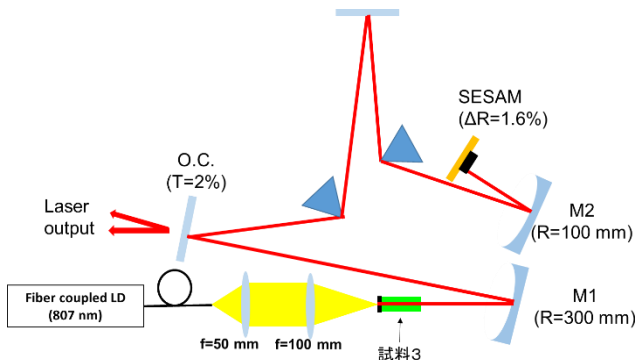


図 11. モード同期発振実験配置図(試料 3)

図 11 に試料 3 を用いたモード同期発振実験配置図を示す。励起光学系は同様である。分散補償にはプリズム対を用いた。プリズム間隔と挿入量から計算される負分散量は共振器片道あたり -4000  $\text{fs}^2$  である。高出力化が望めたので、OC の透過率は 2% とした。

このときの入出力特性を図 12 に示す。励起パワーが 3.4 W 時に CWML が始まった。この閾値での発振スペクトルと SHG 自己相関波形を図 13 に示す。このときのスペクトル幅は 5.4 nm であり、パルス幅は 265 fs であった。試料 2 を用いた際のモード同期発振と比較して半分程度まで短パルス化に成功した。しかし、励起強度を上げていき、パルスエネルギーが増加するに従ってパルス幅の拡大(265 fs → 299 fs)とスペクトル幅の狭窄化(5.4 nm → 5.0 nm)が観測された。この振る舞いはソリトンパルスの理論とは完全に反するものである。この原因として、例えば熱レンズ効果により媒質内部のビーム径が極端に変化していることや、高次分散の影響が懸念されたが、計算の結果どちらも関係していないことが分かった。

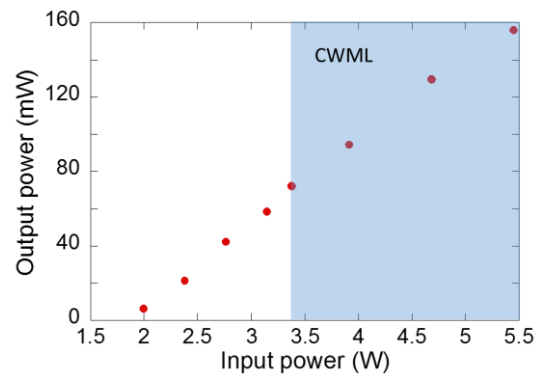


図 12. 入出力特性

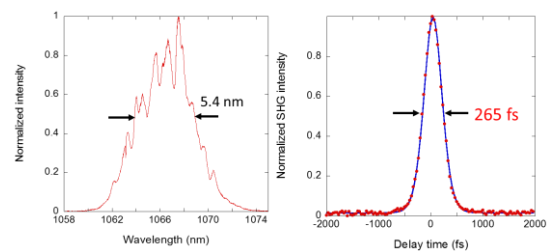


図 13. 発振スペクトルと SHG 自己相関波形

更に問題点を考えたところ、共振器構成について問題が発見されたので以下で説明する。

プリズム対を用いた分散補償では、プリズムでの屈折角が異なることを利用して波長ごとに光路差をつけ、負の分散を得る。しかし、図 11 のようにプリズム対の後に凹面鏡、SESAM と配置してしまうと、その二つのミラーで反射してした際に光路が反転してしまい、正常に負分散が得られなくなってしまう。このような現象を防ぐための対策としては、シンドリカルミラーを用いて SESAM 上に垂直方向のみ集光するという方法と、プリズム対を2つ用いることで SESAM 上にスペクトル分散されていない状態で集光するという手法がある。本研究では SESAM 上での強度を稼ぐため、また SESAM 表面の傷の影響を低減するため後者の手法を採用した。また、この共振器構成の問題が前述した現象のパルス幅の拡大とどのように関わるかの詳細は現在解明中だが、共振器構成を改善することが先決だと考えられたため、図 14 のような実験配置でモード同期を行った。

励起光学系や SESAM は先の実験と同じものを用いた。利得媒質には試料 3 を用いた。分散補償のために用いた2つのプリズム対はそれぞれのプリズム間隔を等しくする必要があり、1対のプリズム間隔は 35 cm とし、合計で 70 cm であるので与えられる負分散量は共振器片道あたり  $-2800 \text{ fs}^2$  となっている。プリズムの数の増加に伴って共振器内エネルギーの減少が考えられたので、OC 透過率は 1% とした。

図 15 に入出力特性を示す。励起強度 4.0 W 時にシングルパルス CW モード同期が始まり、最高平均出力 60 mW を得た。このときのパルストレインを図 16 に示す。繰り返し周波数は 74 MHz であり、共振器長に対応する値である。

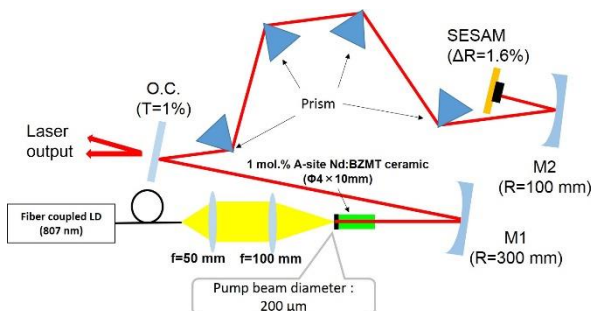


図 14. 実験配置図 (共振器構成改善後)

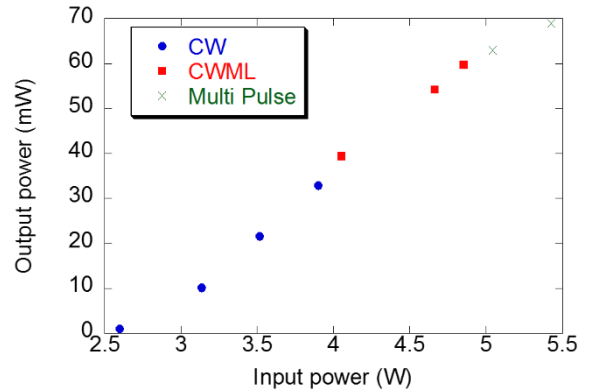


図 15. 入出力特性

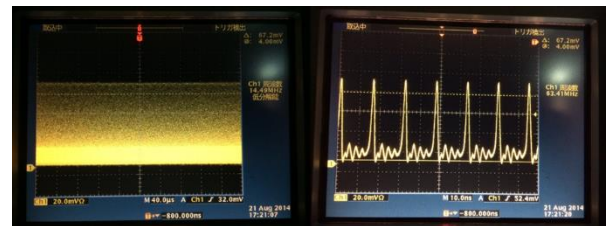


図 16. パルストレイン

シングルパルス CW モード同期時の最大出力時の発振スペクトルと SHG 自己相関波形を図 17, 18 に示す。得られたパルス幅は 196 fs であった。この結果はこれまで得られたパルス幅の中で最短のパルス幅であり、初めて 200 fs を下回る結果を得た。このような短パルス化に成功した理由としては、プリズム対を用いたことによる分散補償の最適化に成功したことが挙げられる。しかし一方で、発振スペクトルには2つの CW 成分(1065 nm と 1075 nm)が確認された。これらの成分が出現する理由としては SESAM によって与えられる変調が不足しており、CW に対する損失が十分でないということが挙げられる。次にこれらの波長に関して考察を行う。1065 nm は試料 3 の持つ蛍光ピーク付近であるため、CW 成分が出現しやすいと考えられる。また、1075 nm は B-site に  $\text{Nd}^{3+}$  イオンが添加された Nd: BZMT の蛍光ピークであり、一部の  $\text{Nd}^{3+}$  イオンが B-site に添加されてしまっていることが分かる。B-site に添加された  $\text{Nd}^{3+}$  イオンは量子効率を減少させる原因になるため、基本的には望まれないものだと考えられた。しかし、発振スペクトルはこれらの2つのピークを跨ぐように広がっているため、B-site に添加された  $\text{Nd}^{3+}$  イオンが利得の拡大に貢献しているのではないかと考えられる。

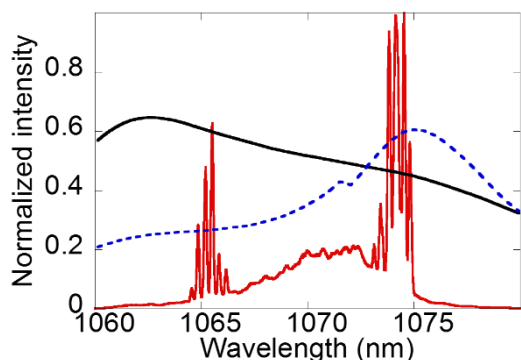


図 17. 発振スペクトル  
(黒実線で試料 3 の蛍光スペクトル、青点線で B-site Nd:BZMT の蛍光スペクトルを示した)

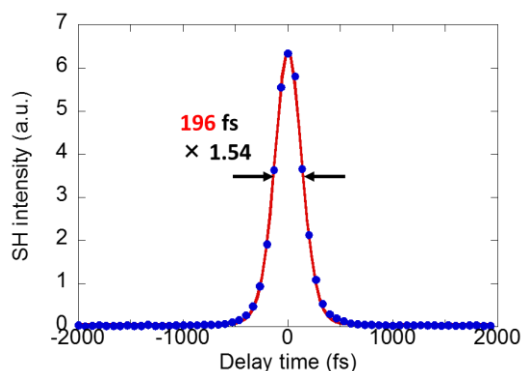


図 18. SHG 自己相関波形

このようなことを考えると、スペクトルの拡大には B-site の  $\text{Nd}^{3+}$  イオンの割合が非常に大きく影響すると考えられるので、今後は添加サイトの最適化を行う。

さらなる短パルス化のためにはより深い変調が必要になるが、市販の SESAM では変調が深くなると平行して非飽和損失も増加し、また、個体差も激しくなる。従って今後短パルス化のためには Kerr レンズモード同期を行う。しかし、現在の共振器構成では Nd:BZMT セラミック中でのビーム径はモードマッチの関係上ある程度大きくする必要があるので、Kerr レンズ効果を得るためには他の Kerr 媒質を共振器内に導入する必要があると考えられる。

また、出力を制限している要因は大きく分けてマルチパルス化と SESAM での損失が挙げられる。とくに SESAM 表面での傷による損失が現在深刻である。SESAM 上でのビーム径を拡大することでマルチパルス化も抑制できるが、傷の影響を大き

く受けてしまうので高出力化のためにも SESAM を必要としない Kerr レンズモード同期が効果的であると考えられる。また、現状では材料損失が  $\sim 3\%/cm$  あり、Nd:glass と比較して 10 倍程度大きいので、材料損失の低減も大きな課題のひとつである。

## 6. まとめと今後の展望

本研究では A-site 1 mol.% Nd:BZMT を用いた CW 発振とフェムト秒モード同期を行った。CW 発振では 1.7 W、スロープ効率 38% という過去の結果を凌駕する結果を得た。また、モード同期では 196 fs という 200 fs 以下のパルス動作を実証し、超短パルスレーザー用利得媒質としての可能性を示した。しかし、現状では本研究の目的であるガラスレーザーの性能を超えることは難しい。そのため課題として、Kerr レンズモード同期が最も効果的であると考えられるため、現在共振器設計を行っている。今後は Kerr レンズモード同期によって Sub-100 fs の超短パルス動作を目標として行う。

## 参考文献

- [1] Y. Kintaka *et al.*, J. Am. Ceramic Society **93**, 1114 (2010).
- [2] H. Kurokawa *et al.*, Opt. Materials **33**, 667 (2011).
- [3] S. Kuretake *et al.*, Opt. Materials **36**, 645 (2014).
- [4] H. Nakao *et al.*, Opt. Materials **35**, 700 (2013).