

フッ化物ファイバーを用いた Sr 光格子時計トラップ光源の開発

武者研究室

梶川 詠司

1. 背景と目的

1967年の国際度量衡委員会にて Cs 原子時計の共鳴周波数である約 9GHz が世界周波数標準に採択され^[1]、原子時計の精度は年々向上してきた。原子時計の不確かさは $\Delta f/f$ に比例するので、Cs 原子時計などのマイクロ波時計より光周波数（数百 THz）の共鳴周波数を基準とする光時計の方が不確かさを向上できる。しかし、光周波数のような早い周波数を直接計測できるカウンターが無いため光時計の開発は困難であった。そして 2005 年にノーベル賞を受賞した光周波数コムが光周波数カウンターの役割を果たし光時計の開発が加速され、世界中で光時計の開発が行われている。2003 年には東京大学の香取准教授（当時）が光格子時計を提案し^[2]、同グループによって最初の実証された^[3]。それまでの光時計は、単一イオン時計と中性原子時計の 2 種類であった。単一イオン時計は単一原子をトラップするため原子間相互作用が無いという利点があるが、一方で S/N 比が弱く短期安定度が良くないという欠点がある。一方で中性原子時計は原子間相互作用やトラップレーザーによる遷移周波数シフトが存在し、精度が低い SN 比が良いという利点がある。光格子時計は両者の利点を兼ね備えた時計である。光格子時計は原子集団をマジック波長でトラップする。マジック波長とはトラップレーザーによって生じる時計共鳴遷移の上準位と下準位のシフト量が同じになる波長であり、マジック波長でトラップするとシュタルクシフトが相殺され、中性原子時計の欠点を克服できる。Sr 光格子時計のトラップレーザーの要求値は、波長 813 nm（マジック波長）、出力 1 W 以上、周波数線幅 1 MHz 以下である。現在は、Ti:Sapphire レーザーが用いられているが、Ti:Sapphire レーザーは水冷装置などによって振動が生じ長期安定動作を困難にする原因の 1 つである。半導体増幅器（Tapered Amplifier : TA）を用いた方法もある。TA を用いると 2 W 近い出力が得られるがビーム品質が悪く光ファイバーへ入射できるパワーが著しく低下するため実際にトラップに使用できるパワーが低くなってしまふ。そのため、現在では Ti:Sapphire レーザーがトラップに用いられている。Sr 光格子時計に限らず、様々な光学実験において光源の性能向上が研究開発にとって大きな役割を果たす。Sr 光格子時計のトラップレーザーにおいても、小型、可搬、高出力、高ビーム品質、単一偏光、さらには長期安定動作可能といったことが求められる。そこで、我々はファイバー MOPA（Master Oscillator Power

Amplifier）という手法で次世代の Sr 光格子時計用トラップレーザー開発を行った。安定で単一周波数発振するマスターレーザーを光ファイバー増幅器で増幅する事で、マスターレーザーの安定度を維持したまま高出力な光を出力する事ができる。さらに、光学系をレンズやミラーの無いオールファイバーシステムにする事で長期安定動作可能な光源となり、次世代のトラップレーザーの要求を満たす事が出来る。ファイバー MOPA のマスターレーザーには安定な外部共振器型半導体レーザー（External Cavity Laser Diode : ECLD）を作成し、光ファイバー増幅器には希土類添加（Tm³⁺添加）フッ化物ファイバーを用いた。

2. Tm³⁺添加フッ化物ファイバー

希土類元素の中で Tm³⁺が唯一 813 nm に蛍光を持ち、813 nm の光を増幅できる。Tm を 810 nm 帯で遷移させるために 1064 nm で Tm³⁺を励起した。790 nm でも励起できるが 810 nm 帯に強い再吸収を持つため高輝度な光源で励起する必要がある。その点、790 nm には高輝度な光源が無いのでコア励起が困難である。そのため、1064 nm の Yb³⁺ : ファイバーレーザーでコア励起を行った。

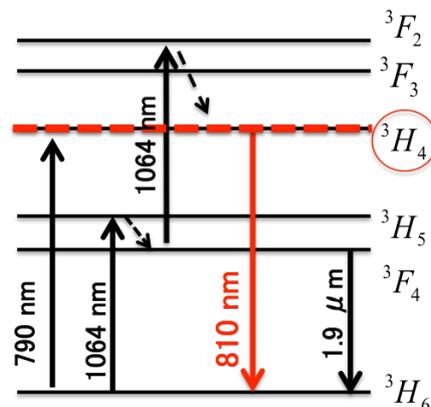


図 1 810 nm 帯の遷移図

近年、数μm 帯のファイバーレーザーの研究が盛んに行われており赤外域においてシリカファイバーより損失の少ないフッ化物ガラスファイバーによって高い出力が得られている^[4]。フッ化物ガラスファイバーはフッ化アルミニウム、フッ化インジウム、そしてフッ化ジルコニウムを主材としたファイバーが一般的であり、フッ化ジルコニウムを主材とした ZBLAN (ZrF₄:57%, BaF₂:34%, LaF₃:5%, AlF₃:4% [mole%])^[5]ファイバーが一般的に広く用いられている。また、フッ化物ガラスファイバーによって広帯域の Supercontinuum(SC)光の発生も報告されている^[6]。

しかし、不純物を取り除く事が難しく品質の

良いフッ化物ガラスファイバーの作成は難しい。そのため機械的強度が弱いという欠点がある。ファイバー増幅器としてもフッ化物ガラスファイバーは良い特性を持つ。一般的な Tm^{3+} 添加シリカガラスのフォノンエネルギーは最大で 1100 cm^{-1} なのに対して、ZBLAN ガラスは約 565 cm^{-1} である[4]。そのため、シリカガラスは原子間の結合力が強く機械的強度も強い。母材がシリカガラスの場合、励起された原子の多くのエネルギーが非輻射遷移で消費されてしまうため蛍光できる波長に限界がある。一方、ZBLAN ガラスはフォノンエネルギーが小さく、添加された希土類元素の広い波長域で蛍光を示す[4]。フォノンエネルギーが小さいと輻射遷移確率が高くなるので上準位寿命が大きくなる。810 nm 帯で遷移する準位の上準位寿命は、シリカガラスファイバーでは $14.2\text{ }\mu\text{s}$ 、ZBLAN ファイバーでは $1350\text{ }\mu\text{s}$ であり[7]、ZBLAN ファイバーにすると十分 810 nm 帯を増幅できる。一方でシリカファイバーを母材とすると十分に増幅できない。以上の事から Tm^{3+} 添加フッ化物ファイバーを増幅器とした。

3. 空間系ファイバー-MOPA

Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバーをファイバー増幅器に、ECLD をマスターレーザーとして空間系でファイバー-MOPA を構築し、後方励起によって増幅実験を行った。後方励起は、前方励起と比較して ASE (Amplified spontaneous emission) が多く雑音指数が高くなるが、出力パワーが高い。十分な出力を得るために後方励起で実験を行った。ファイバー増幅器に用いたフッ化物ファイバーは、Le Verre Fluoré 社製、コア径 $5.1\text{ }\mu\text{m}$ 、MFD= $5.6\text{ }\mu\text{m}$ @970 nm、クラッド径 $125\text{ }\mu\text{m}$ 、添加濃度 10000 ppm、ファイバー長さ 1.5 m、NA=0.15、カットオフ波長 970 nm、の物を用いた。

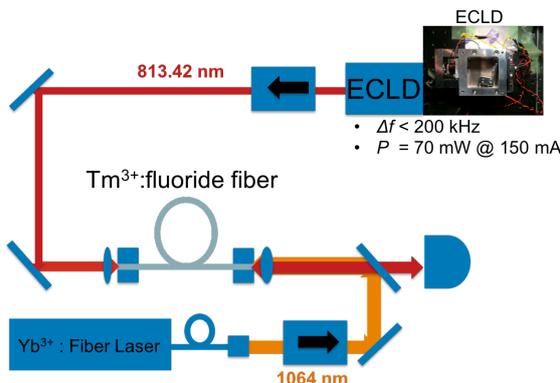


図 2 空間系ファイバー-MOPA 実験図

この系で増幅実験を行い励起パワー 13.5 W にて 810 nm 帯におけるファイバー出射では世界最高出力の 1.68 W を出力する事ができた(図 3)。

次に、長期動作について評価した。増幅した状態で出力の揺らぎを測定すると数分で出力が落ちた。これを熱による物だと考え図 3 のよう

に端面付近をペルチェ素子によって冷却しヒートシンクの自重によって固定した。

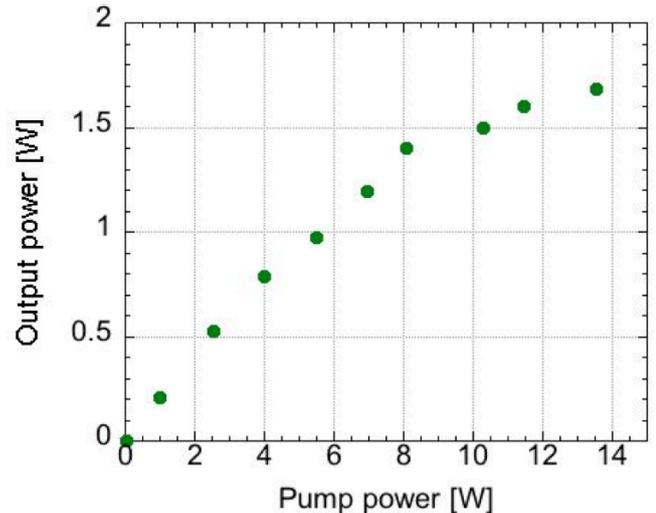


図 3 空間系ファイバー-MOPA 増幅結果

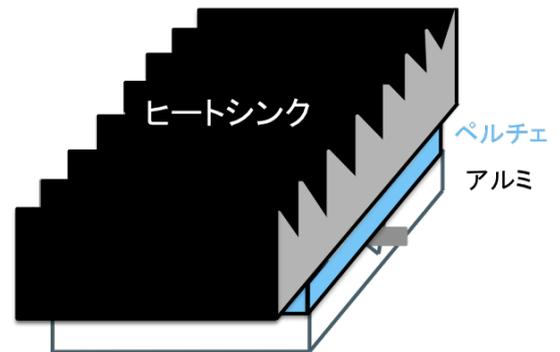


図 4 端面付近冷却図

冷却した結果、以下のように約 6 時間増幅状態を維持できた。

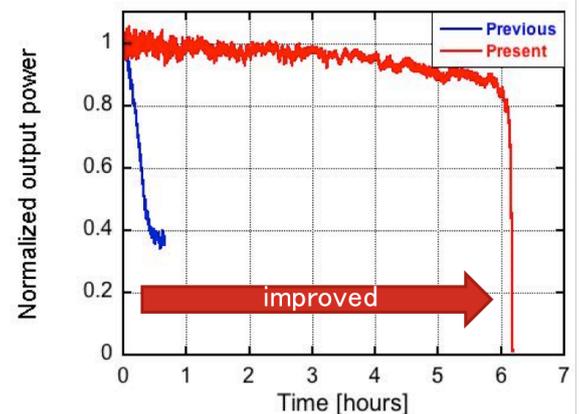


図 5 増幅光の変動

短期的なパワー揺らぎは励起光のパワー揺らぎによるものであった。そのため短期的なパワー揺らぎは励起光を改善する事で対処できる。長期的には 6 時間の動作は達成できたがファイバー端面の熱揺らぎを十分抑える事が出来ない。そのため数ヶ月の動作は大変困難であり根本的な解決が必要であった。

また、 Tm^{3+} の発熱も考えノンドープフッ化物ファイバーを融着しノンドープフッ化物ファイバー側から励起し、時間変動を測定した(図 6)。

V 溝のついたステージにカプトンテープで固定し、ペルチェによる冷却は行わなかった。

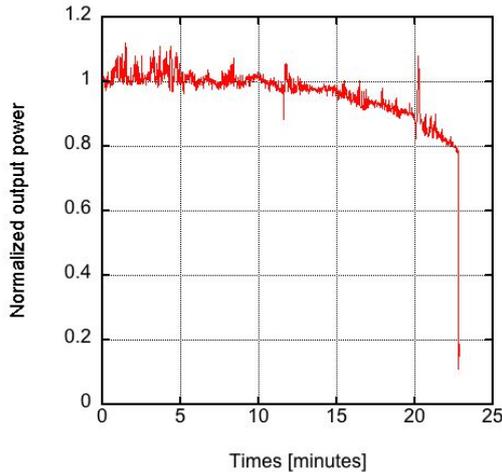


図 6 ノンドープフッ化物ファイバー端面から励起した時の増幅光変動

ノンドープのフッ化物ファイバーと Tm^{3+} 添加フッ化物ファイバーの融着は GPX-3000 で行い、表 1 のような条件で融着が可能であった。

表 1 フッ化物ファイバー同士の融着

Le Verre Fluoré 社製フッ化物ファイバー	
Tm^{3+} -doped 5.1/125 μm NA=0.15 vs Non-doped 5.1/100 μm NA=0.23	
Power	2.1 W
On duration	0.2 sec
Pre gap	5 μm
Pre push	3 μm
Hot push	8 μm
Hot push delay	0.2 sec
Hot Push velocity	50 $\mu m/sec$
Distance	6830 μm
損失	0.12 dB (2.7 %)

図 7

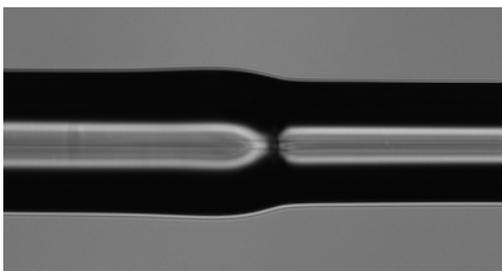


図 7 フッ化物ファイバー同士の融着

図 6 のようにノンドープフッ化物ファイバー側から励起しても顕著な改善は見られなかった。固定方法やアライメントなどによって動作時間を伸ばす事が可能であるが、著しい改善は困難である。そのためオールファイバーMOPA 光源の開発が必要となる。

4. オールファイバーMOPA

端面の熱揺らぎが長期動作の問題となったため、オールファイバーにすることで改善を目指した。オールファイバーMOPA 構築のためには

フッ化物ガラスファイバーとシリカガラスファイバーを低損失で結合しなければならない。そこで3つの方法で結合を行った。融着機を用いた直接接合(融着)、接着剤による結合、そしてFCコネクタによる結合である。

一般的なシリカファイバー同士の接合は融着機を用いてファイバーの端面同士を溶け合わせる事で融着が可能である。融着は低損失で容易な接合が可能であり、機械的強度も高い。しかし低融点ガラスファイバーとシリカガラスファイバーの場合は融点が大きく異なるため一般的な融着ができない。フッ化物ガラスファイバーとシリカガラスファイバーの融着は加熱と加圧による溶け合わない融着であり、近年報告された例^[8,9,10]を参考にフッ化物ファイバーとシリカファイバーの融着を試みた。

シリカガラスの融点は $1500^{\circ}C$ 、フッ化物ガラスは $260^{\circ}C$ である^[9]。そのため一般的な融着は不可能であり、報告例ではフッ化物ファイバーの端面が膨らみながらシリカファイバーに押し込まれ加熱を加圧によって融着されている。

融着条件の最適化を行うために Le Verre Fluoré 社製と FiberLabs 社製のフッ化物ファイバーを用いた。融着機についてはアーク放電によって加熱する融着機(FSM-40F)と、フィラメントによって加熱する融着機(GPX-3000)を用いた。フッ化物ファイバーのクリーブには Photon Kinetics 社製 FK-11 もしくは FK-12 を用いた。フッ化物ファイバーとシリカファイバーの直接接合は難しいが、以下のようにすると成功できる。それは加熱点をシリカファイバー側にシフトし、加熱されたシリカファイバーにフッ化物ファイバーが押し込まれる事によって十分な加圧を行うことである(図 8)。もし一般的な融着同様にファイバー中央を加熱点とすると、フッ化物ファイバーの先端付近が膨らんでしまい加圧不十分でフッ化物ファイバーが押し込まれないため接合がさらに困難である(図 9)。接合が成功した一例を表 1 に記す。

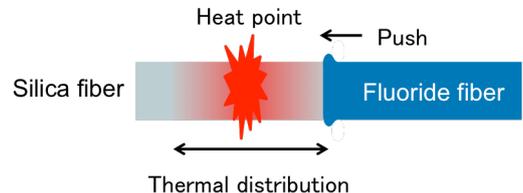


図 8 加圧が十分な時の接合図

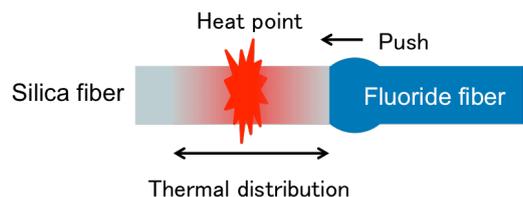


図 9 加圧が不十分な時の接合図

表 2 接合成功時のパラメーター

SMF-28 vs FiberLabs 社製 Non-doped ZBLAN 6/125 μm			
アーク放電(FSM-40F)		フィラメント(GPX-3000)	
端面間隔	10 μm	Power	2.1W
アーク点	右-870 μm	On duration	0.5 sec
押し込み量	25 μm	Pre gap	4 μm
前放電	-42 bit	Pre push	2 μm
on/off 時間	10/35 ms	Hot push	17 μm
放電時間	300 ms	Hot push delay	0.4 sec
放電 1	Off	Hot Push velocity	100 μm/sec
放電 2	-60 bit	Distance	6510 μm
on/off 時間	5/150 ms		
放電時間	1 sec		
損失	約 1.5 dB	損失	約 0.6 dB

図 10

図 11



図 10 アーク放電によって加熱した時の融着画像

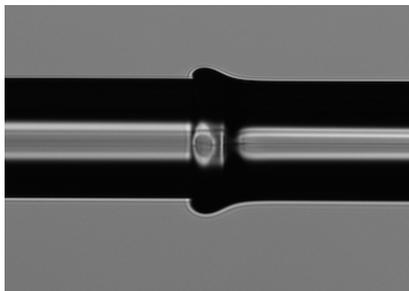


図 11 フィラメントによって加熱した時の融着画像

次に空間系ファイバー-MOPA で 1.68 W 出力できた Le Verre Fluoré 社製 Tm³⁺添加コア径 5.1 μm、添加濃度 10000 ppm のフッ化物ファイバーとシリカファイバー (Nufern 社 1060-XP) の融着を試みた。しかしこれまでのような接合を再現する事が困難であり、接合を成功するためには融着機のパラメータ最適化だけでは不十分である事がわかった。まず端面角度が非常に重要になる。十分に押し込むためにはフッ化物ファイバーとシリカファイバーの端面角度が互いに 0° に近くなければならない。少なくとも 1° 以上の角度が付いている時に接合は成功しない。図 12 は接合成功した時の ZBLAN ファイバー端面画像であるが、押し込まれた ZBLAN ファイバーが均一に膨らんでいるのがわかる。一方、接合失敗時は ZBLAN ファイバーのふくらみが不均一になっている。

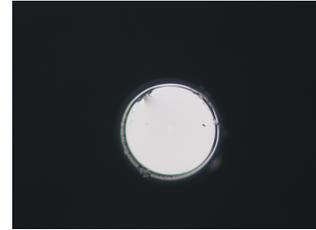


図 12 接合成功時の ZBLAN ファイバー端面

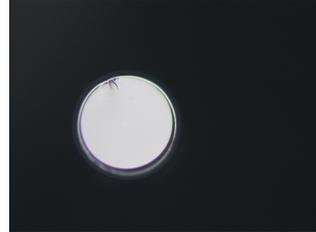


図 13 接合失敗時の ZBLAN ファイバー端面

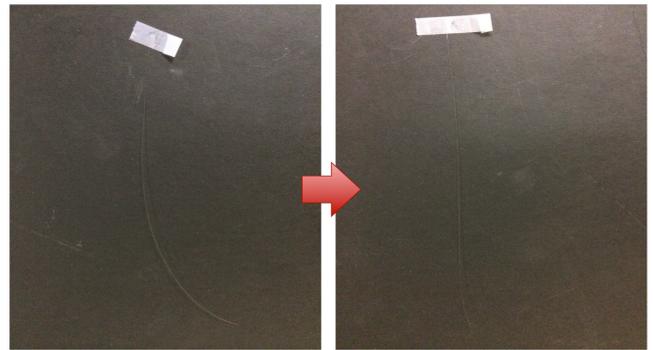


図 14 フッ化物ファイバーの曲がり

フッ化物ファイバーは曲がり癖がつきやすく接合の妨げになる。曲がり癖が付いた状態で融着機にセットすると、端面が傾いてしまい接合失敗を招く。そのためフッ化物ファイバーの曲がり癖を直す必要がある。そこでファイバー先端に重りを付けテンションがかかった状態で、温風機(ヒートガン)によってファイバーを加熱すると図 14 のように曲がり癖を直す事が出来た。フィラメントによって加熱を行う GPX-3000 では融着点を不活性ガス(アルゴンガス)雰囲気にする。この不活性ガスの流量が不十分である時はフッ化物ファイバー端面に気泡のようなものが生じた(図 15)。GPX-3000 を用いて接合を成功するためには十分な不活性ガス雰囲気にする必要がある。



図 15 不活性ガスが不十分な時の端面

以上の事に注意して融着実験を行っても成功率は低く、接合に成功してもすぐに接合が外れてしまったり損失が大きかったりと良質な接合を得られなかった。そのため他の方法も試みた。

接着剤による接合を行った。GPX-3000 を用いてシリカファイバーと ZBLAN ファイバーを

突き合わせた状態で光を伝搬し、十分結合するようにファイバーの位置を調整した。GPX-3000はファイバーの位置を1 μm ずつ微調整可能でありエポキシ樹脂の硬化を待ちながら随時ファイバーの位置ずれを調整した。エポキシ樹脂はEPOXY TECHNOLOGY社の353NDという比較的熱耐性が高く1060 nmの光の透過率が98.263%と透明性に優れたエポキシを使用した。エポキシ樹脂を上手く硬化させると図16のようになり、1064 nmの光を伝搬させると Tm^{3+} の蛍光が確認できる事からコアに十分光が結合していることがわかる。これを上下からペルチェ素子で十分冷却しながら Tm^{3+} を励起した。約2Wで励起したところでエポキシ樹脂が焦げてしまい、光が接合点を伝搬しなくなった。この時の励起強度は約14 MW/cm²である。我々の光学系では励起強度が高くなってしまったためこの接合は不向きであるが、励起強度が低い場合であれば有効な結合方法である。

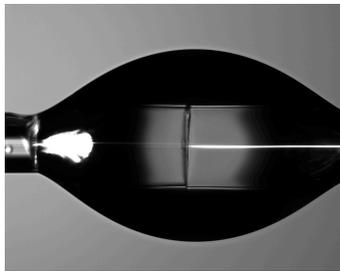


図 16 接着接合の接合点

次にFCコネクタを用いた機械的結合を試みた。図17のように増幅部分を2段階に分けた。

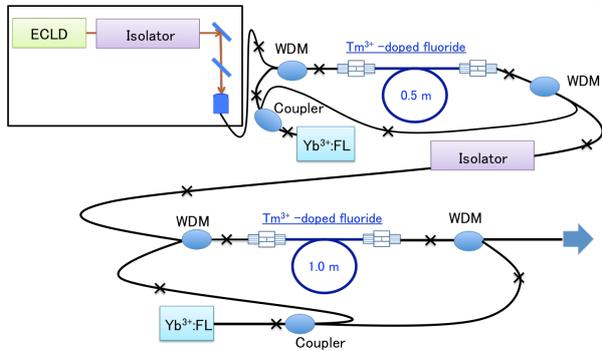


図 17 FCコネクタによるファイバーMOPA

一般的なFCコネクタはファイバーがセラミックフェルールにエポキシ樹脂で固定されており、ハイパワー使用時にはエポキシ樹脂が溶けて端面に流れてしまう。そのためハイパワー使用時には注意が必要であるため増幅部分を2段階に分けて双方向励起にする事で励起パワーを分散させた。また、Le Verre Fluoré社のフッ化物ファイバーは約1.2 μm の偏心があり、結合効率を見積もったが1 dB以上の損失は出ない計算結果となったため光学系を構築した。 Tm^{3+} 添加フッ化物ファイバー(Le Verre Fluoré社)のMFDが5.6 μm @970 nmなので、損失を減らすために同様なMFDを持つシリカファイバーと

結合させる必要がある。そこでCorning社のHI1060(MFD 5.9 \pm 0.3 μm @980 nm)のパッチケーブルを用いた。カプラはOPNETI Communications社の分岐比50/50、パワー耐性7Wのものを使用した。WDM(Wavelength Division Multiplexing)についてはGooch&Housego社製で使用ファイバーはHI1060FLEXである。HI1060FLEXのMFDは4.0 \pm 0.3 μm @980 nmである。コネクタについてはFC/PCコネクタを使用した。FC/APCコネクタにすると端面反射が抑えられ寄生発振が生じないが、FC/PCコネクタに比べて調整が難しく結合効率が低くなる特徴がある。また、端面反射した光が熱となりエポキシ樹脂を溶かし、コネクタを壊してしまいます恐れがあるため、FC/PCコネクタのファイバーを用いた。光学系を構築したがWDMにおいて信号光(813 nm)が約34%損失してしまった。813 nmの光はHI1060FLEXのシングルモード条件でない事が大きな損失を生んだ原因だと考えられる。WDMで生じる信号光の損失が大きいため十分に増幅しなければ1Wを安定して出力する事は難しい。

高い励起強度によって接合点の熱破壊が生じてしまう事を避けるために、2段目の増幅器のコネクタをペルチェ素子によって冷却した。WDMもペルチェ素子によって冷却を行った。このFCコネクによるファイバーMOPAで700 mWほどは出力できたが1Wは熱破壊の危険があるため控えた。このとき結合点を通過するパワーの強度は少なくとも約28 MW/cm²であった。

1段目増幅後のスペクトルを測定すると寄生発振が生じた。

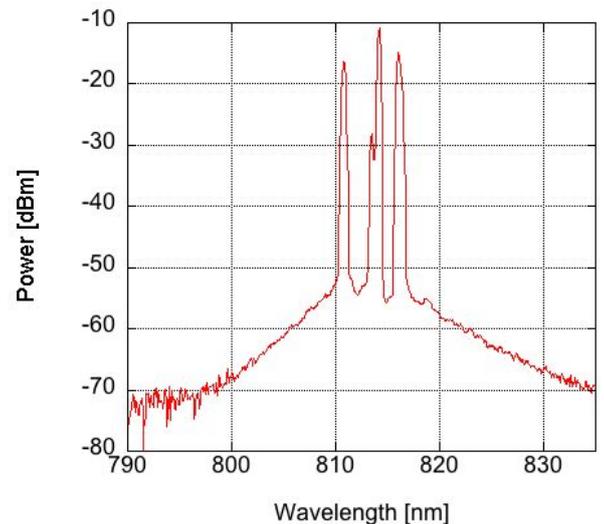


図 18 1段目増幅後のスペクトル

フッ化物ファイバー(Le Verre Fluoré社)の屈折率は1.519であるのに対してHI1060の屈折率は1.464であり、結合点で生じるフレネル反

射率は 0.03 %(-34.69 dB)である。寄生発振を抑えるために戻り光の抑制が必要である。FC/APC コネクタを用いた場合の戻り光は-60 dB であり FC/APC コネクタによる機械的結合であれば寄生発振が抑制できると考えられる。

この結果から、フッ化物ファイバーとシリカファイバーを低損失に直接接合できてもフレネル反射が生じてしまうため直接接合によるオールファイバー化も難しいと考えられる。

5. まとめと今後

次世代周波数標準の候補である Sr 光格子時計用トラップ光源開発を行った。Tm³⁺添加フッ化物ファイバーを用いた空間ファイバーMOPAによって光学的要求は達成出来たが 1064 nm の Yb³⁺ファイバーレーザーによる励起強度が高く、ファイバー端面の熱揺らぎを生じてしまい長期動作が困難であった。ファイバー端面の熱揺らぎを克服するため端面付近をペルチェによって冷却したが数時間の動作しか達成出来なかったためフッ化物ファイバーとシリカファイバーの接合を試みた。接合方法は融着、接着剤による接合そして FC コネクタを用いた機械的結合を行った。融着ではアーク放電による融着機とフィラメントによる融着機を用いて融着でき、融着機のパラメータ最適化が行えた。しかし、再現性や機械的強度が大変乏しく品質の良い融着が困難であった。接着剤による接着は低い強度の光が伝搬する場合(14 MW/cm²以下)では有効であるが、我々のような高い強度の場合には不向きであった。FC コネクタによる機械的結合では FC/PC コネクタを用いたため寄生発振が生じてしまった。そのため、融着によって低損失に接合できても寄生発振が生じてしまうため融着によるオールファイバー化も難しいと考えられる。これらの事から我々のファイバーMOPAではFC/APC コネクタによる機械的結合でフッ化物ファイバーとシリカファイバーを結合する事が最も良いと考えられる。

フッ化物ファイバーとシリカファイバーの結合は実用的な光源開発において重要である。フッ化物ファイバーの欠点は機械的強度が低く光源開発が難しい点にある。その欠点が克服されればフッ化物ファイバーは大変有用なファイバーである。光ファイバーを用いた光源開発では高い強度の光が結合点を伝搬すると熱による破壊が生じてしまう。フッ化物ファイバーのように低融点ガラスファイバーであればその影響が大きい工夫が必要である。融着は大変有用な手法であるが再現性が乏しく注意すべき点はいくつかある事がわかった。再現性を上げるために、今回は融着のときに行わなかったが端面を超音波洗浄する事も必要であろう。超音波洗浄によってクリーブした時に端面に付着したゴミが除去されるためである。強度が高い場合は融着点の冷却も必要であろう。強度が低い場

合ではエポキシ樹脂による接着で結合する事も1つの手法である。FC コネクタによる機械的結合も、ある程度の強度に耐える事ができたためシリカファイバーとの結合において大変有効な結合方法であるとわかった。今後は FC/APC コネクタによる結合でオールファイバー化を目指す。安定に 1 W を出力する事は難しいかもしれないので、熱破壊を避けるために励起強度を下げる事や効率の良い励起方法を考える必要がある。

今後、フッ化物ファイバーを用いた光源開発が盛んに行われ関連製品の多様性が増し、ファイバーを用いた光源開発が発達されればと思う。

6. 参考文献

- [1] “The International system of units (SI)” SI Brochure. BIPM. 8th edition, 2006
- [2] M. Takamoto and H. Katori, “Ultrastable Optical Clock with Neutral Atoms in an Engineered Light Shift Trap”, Phys. Rev. Lett. 91, 053001 (2003)
- [3] M. Takamoto *et al.*, “An optical lattice clock”, Nature. **435**, 321 (2005).
- [4] Stuart D. Jackson *et al.*, “Towards high-power mid-infrared emission from a fibre laser”, nature photonics. **28**, 423 (2012)
- [5] www.hanamuraoptics.com/opticalfiber/leverre/leverre_fluoride_glass_fiber.html (ハナムラオプティクスHP)
- [6] Xin Jiang *et al.*, “Deep-ultraviolet to mid-infrared supercontinuum generated in solid-core ABLAN photonic crystal fiber”, nature photonics. **9**, 133 (2015)
- [7] Pavel Peterka *et al.*, “Theoretical modeling of fiber laser at 810 nm based on thulium-doped silica fibers with enhanced ³H₄ level lifetime”, OPTICS EXPRESS. **19**, 2773 (2011)
- [8] Hideyuki Okamoto *et al.*, “Efficient 521 nm all-fiber laser: splicing Pr³⁺-doped ZBLAN fiber to end-coated silica fiber”, OPTICS LETTERS, **36**, 1470 (2011)
- [9] Rawaa Al-Mahrous *et al.*, “A Thermal Splicing Method to Join Silica and Fluoride Fibers”, Journal of Lightwave Technology, **32**, 303 (2014)
- [10] Vincent Fortin *et al.*, “30 W fluoride glass all-fiber laser at 2.94 μm”, OPTICS LETTERS, **40**, 2882 (2015)