

# カーボンナノチューブ可飽和吸収体を用いた超短パルスレーザーの研究

白川晃研究室 1533106 横島 直行

## 1. 序論

モード同期によって得られる超短パルスレーザーは高いピーク強度と短い時間幅を持ち、難加工材料の加工や高エネルギー物理学など様々な応用がなされ、更なる高出力化が求められている。現在、固体レーザーのモード同期の手法として半導体可飽和吸収体鏡(SESAM)や、カーレンズモード同期を用いた手法が一般的である。SESAMは比較的容易にモード同期を得ることができるが、応答速度が遅いことや集光した時のダメージなどで短パルス化に制限があること、作製に高度な技術と高いコストが必要などの問題点がある。一方、カーレンズモード同期は高出力と短パルスの両立が可能であるが、高度なアライメントが必要であることや安定性に欠けるため産業応用に不向きであるなどのデメリットがある。そこで近年単層カーボンナノチューブ(SWCNT)を可飽和吸収体として用いたモード同期が注目を集めている[1]。SWCNTは1~2  $\mu\text{m}$  にかけて広い吸収帯域や、数十~数百 fs の早い応答速度を持ち、作製が容易で SESAM に代わるモードロッカーとして近年盛んに研究がされている。

利得媒質には  $\text{Yb}:\text{CaF}_2$  を用いた。 $\text{CaF}_2$  は比較的高い熱伝導率(9.5 W/mK)と非常に広く滑らかな蛍光スペクトル(~70  $\mu\text{m}$ )を合わせ持ち、Yb 添加固体材料の中でも高出力と短パルスを両立できる媒質の一つであると考えられている。本研究ではこの SWCNT と  $\text{YbCaF}_2$  を用いモード同期発振実験を行った。

## 2. 原理

### 2.1 SWCNT

CNTの構造は、蜂の巣状の炭素原子のみでできたシートを円筒状に丸めた構造をしており、筒の直径は数 nm から数十 nm、長さは 1  $\mu\text{m}$  から数  $\mu\text{m}$  ほどであり筒の内部は真空である。このときの炭素原子のみでできたシートをグラフェンという。カーボンナノチューブの構造は一般的にグラフェンの丸め方によって決まる。この丸め方により SWCNT は金属であったり半導体であったり性質が決定される。半導体の性質を示す SWCNT の場合、直径によって吸収の帯域が異なる特性を持っており、様々な直径の SWCNT が分散された試料全体では幅広い吸収帯域を示す。また、半導体の性質を示す SWCNT が励起された場合、ナノチューブ間の相互作用によって励起エネルギーが金属の性質を示す SWCNT に移動する。この速度が数十から数百 fs と非常に早く、このため SWCNT は非常に早い緩和時間を持つ。

本実験で用いた試料は SWCNT をシリカガラス上にスピコートしたものを用いた。図 1 に試料の線形透過率、図 2 に非線形透過率を示す。本研究では sample1 のみを用いた。

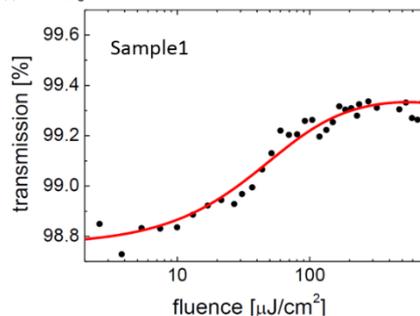


図 1 SWCNT の線形透過率

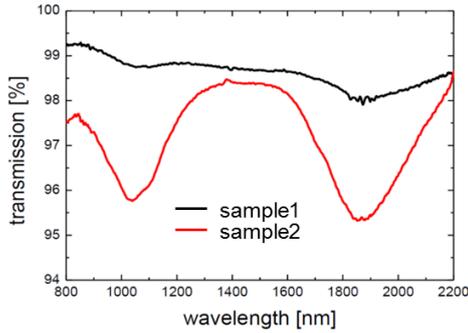


図 2 SWCNT の非線形透過率

図 1 より、 $1\ \mu\text{m}$  から  $2\ \mu\text{m}$  にかけて広い吸収帯域を持っていることが確認できる。また、図 2 よりフルーエンスが大きくなっていく毎に透過率が高くなる、いわゆる可飽和吸収特性が確認できる。また、この試料の飽和フルーエンスは  $28\ \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、変調の深さは  $0.63\%$  であった。

## 2.2 Yb:CaF<sub>2</sub>

Yb:CaF<sub>2</sub> は広く滑らかな蛍光スペクトル幅 ( $70\ \text{nm}$ ) と比較的高い熱伝導率 ( $9.5\ \text{W}/\text{mK}$ ) が特徴である。図 3 に蛍光、吸収スペクトルを示す。また、図 4 に一般的に用いられる固体利得媒質のスペクトル幅と熱伝導率のグラフを示す[2]。図 4 より、CaF<sub>2</sub> は固体利得媒質の中でも熱伝導率と蛍光スペクトル幅を合わせ持つ媒質であると考えられるため、高出力と短パルスを実現できる利得媒質として最適であると考え採用した。

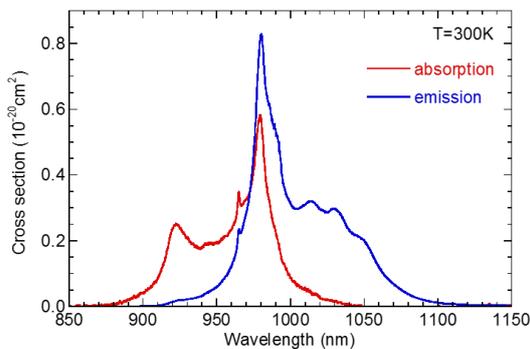


図 3 Yb:CaF<sub>2</sub> の蛍光、吸収スペクトル

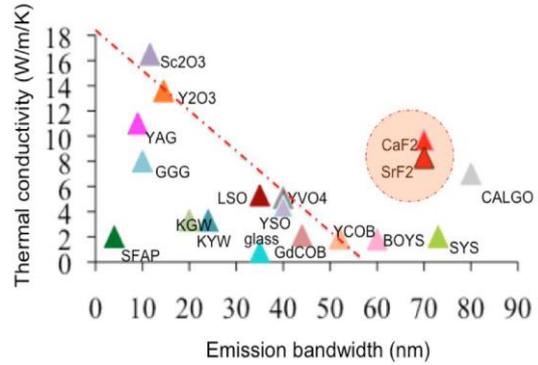


図 4 一般的な固体利得媒質の熱伝導率と蛍光スペクトル幅

## 3. 実験

### 3.1 モード同期実験系

図 5 にモード同期発振実験系を示す。

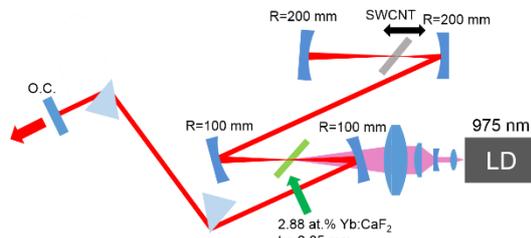


図 5 実験配置図

本研究では Z 型共振器を採用し、利得媒質として厚さ  $2.85\ \text{mm}$  の  $2.88\ \text{at.}\%$  Yb:CaF<sub>2</sub> をブリュースター角で配置した。励起には波長  $975\ \text{nm}$  のブロードストライプ LD を用い、4 枚のレンズを用いてコリメイトし、集光した。この時の集光径は縦  $20\ \mu\text{m}$  × 横  $70\ \mu\text{m}$  ほどであった。また、自己無撞着法によって計算された利得媒質中のビーム径は約  $25\ \mu\text{m}$  であった。また、SWCNT もブリュースター角で配置し 2 枚の  $R=200\ \text{mm}$  のミラーを用いて集光した。この時 SWCNT を平行移動させることによって SWCNT 上のビーム径を調整し、フルーエンスを調整できるようにした。分散補償には SF10 ガラスのプリズム対を使用し、プリズム間の距離は約  $55\ \text{cm}$  から約  $25\ \text{cm}$  まで変化させた。この時の共振器一往復での負分散の値は約  $-6000\ \text{fs}^2$  から約  $-2700$

fs<sup>2</sup>であった。O.C.は3%、1%、0.3%のものを  
を用い、波長選択のためO.C.の手前にナイ  
フエッジを挿入した。

### 3.2 モード同期実験結果

まず初めに、プリズム間距離 55 cm で実  
験を行った。この時共振器に与えられる  
GDD は-6000 fs<sup>2</sup>であり、O.C.は3%のもの  
を用いた。この時得られたスペクトルと自  
己相関波形を図6に示す。

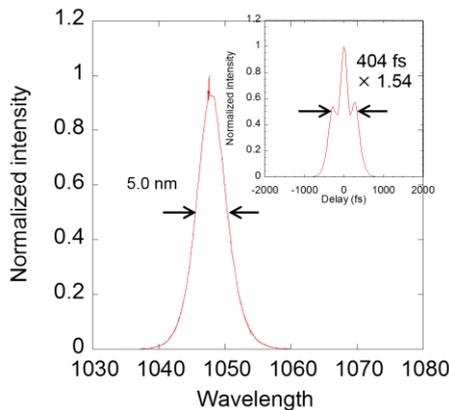


図6 GDD -6000 fs<sup>2</sup>, O.C. 3%の時の  
発振スペクトルと自己相関波形

モード同期はセルフスタートし、励起パ  
ワー約 5 W、最大平均出力 120 mW の時に、  
発振スペクトルの半値全幅は 5.0 nm、中心  
波長 1048 nm を得た。自己相関波形からわ  
かるように可飽和吸収体が過剰に飽和して  
しまい、パルスの分裂が起きてしまってい  
た。しかし興味深いことに、プリズム間の距  
離は同じままの状態でも励起パワーを上げ、  
SWCNT の位置や利得媒質の位置などを変  
化させているとシングルパルスのモード同  
期も得ることができた。この時のスペクト  
ルを図7に示す。

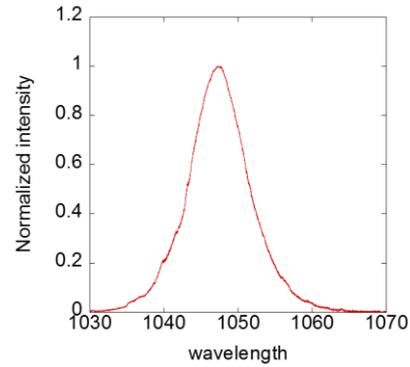


図7 GDD -6000 fs<sup>2</sup>, O.C. 3%の時の発振  
スペクトルと自己相関波形(カーレ  
ンズモード同期)

これは SWCNT のモード同期だけではなく  
カーレンズモード同期(KLM)も同時に得ら  
れ、SWCNT アシスト KLM となり、KLM  
の持つ深い変調によってマルチパルスが抑  
制され、シングルパルスが得られたと考え  
られる。そこでプリズムの距離を 45 cm、  
35 cm、25 cm と短くし共振器に与える  
GDD を減らし、引き続き SWCNT アシス  
ト KLM を狙い実験を行った。これらの結  
果をまとめたものを図8に示す。

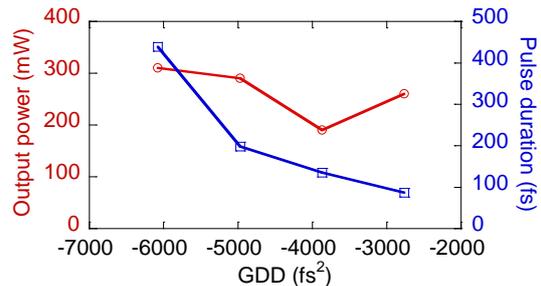


図8 O.C. 3%時の GDD に対する  
出力とパルス幅

プリズム間の距離 45 cm、35 cm、25 cm  
全てで CW モード同期を得ることができ、  
特にプリズムの距離が 25 cm の時には 100  
fs を切るようなパルス幅を得ることができ  
た。GDD の量を減らしていく毎にパルス  
幅が短くなっていくことからソリトンモ  
ード同期であることが確認できる。プリズ  
ム間の距離 25 cm の時のスペクトルと自  
己相関波形を図9に示す。時励起パワー12W、

最大平均出力 260 mW の時にスペクトル半値全幅 16.5 nm、パルス幅 87 fs、繰り返し周波数 83 MHz を得た。

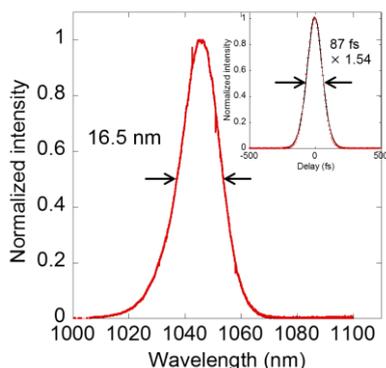


図 9 GDD -2500 fs<sup>2</sup>, O.C. 3%時の発振スペクトルと自己相関波形

また、更なる短パルス化を狙うために O.C. の透過率を 1% に下げ、共振器内パワーを上げることで SPM の量を増やそうと試みた。この時の発振スペクトルと自己相関波形を図 10 に示す。

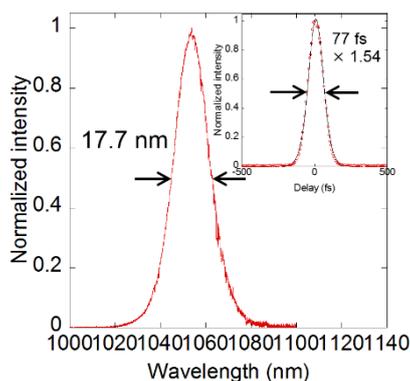


図 10 GDD -2500 fs<sup>2</sup>, O.C. 1%時の発振スペクトルと自己相関波形

スペクトルが広がる時に長波長側の方が多く利得を得られるため 1054 nm の方向にシフトしたと考えられる。励起パワー 12 W、最大平均出力 94 mW の時に、スペクトル幅 17.7 nm、パルス幅 77 fs、繰り返し周波数 83 MHz であった。O.C. の透過率を下げたため、最大平均出力は下がったが共振器内パワー増大し目的であった短パルス化を達成できた。

同様の理由で O.C. の透過率を 1% から 0.3% に変え、プリズム間距離、SWCNT も同条件で実験を行った。この時のスペクトルと自己相関波形をそれぞれ図 11 に示す。

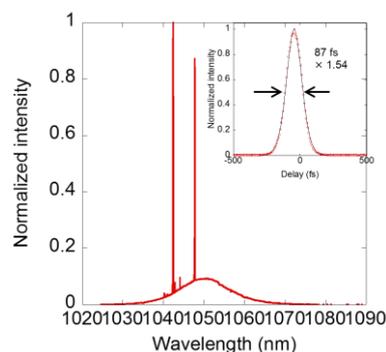


図 11 GDD -2500 fs<sup>2</sup>, O.C. 0.3%時の発振スペクトルと自己相関波形

励起パワー 12 W、最大平均出力 30 mW の時にパルス幅 87 fs、繰り返し周波数 83 MHz を得た。スペクトルからわかるようにモード同期成分以外に CW 成分が現れている。共振器内パワーは O.C. の透過率が 1% の時よりも上がっているが利得を CW 成分に取られてしまっているためモード同期成分のスペクトル幅は O.C. の透過率が 1% の時よりもやや狭くなっておりパルス幅も広がってしまった。これは変調深さが不足しており、共振器内パワーが上がったことによってスペクトルが広がった状態よりも CW 発振をした時の方が利得を得やすくなったことが原因であると考えられる。このことよりこれ以上 O.C. の透過率を下げることによってスペクトル幅を広げる方法には限界が生じたと考えられる。

次にこのモード同期が SWCNT アシステッド KLM であることの確認を行った。SWCNT を挿入していた場所に同様の厚みのシリカガラスを SWCNT 試料の代わりに挿入しプリズムの距離を 55 cm、45 cm、35 cm、25 cm で実験を行った。この時 O.C. の透過率は 3%、1% のものを用いた。結果としてどのプリズムと O.C. の組み合わせにお

いても KLM 同期を得ることはできなかった。このことから本研究で得られたモード同期は SWCNT アシテッドカーレンズモード同期であると考えられる。

表 5.1 に今回行った実験の結果と現在報告されている SWCNT を用いたモード同期 Yb 添加固体レーザーの結果をまとめた。これらの結果を比較すると、本研究の Yb:CaF<sub>2</sub> の結果は従来の結果と比較して高出力かつ短パルスを達成することができた。また、O.C.の透過率が 1%のものは SWCNT を用いた Yb 添加固体レーザーの中では世界最短パルス幅であった。

表 3.1 SWCNT を用いた Yb 添加固体材料のモード同期発振報告[3],[4]

	Yb:CaF <sub>2</sub>	Yb:KYW	Yb:CLNGG
平均出力	94 mW / 260 mW	24 mW	90 mW
パルス幅	77 fs / 87 mW	83 fs	90 fs

### 3.3 比較実験

比較実験として本研究で用いた Yb:CaF<sub>2</sub> を使用し、SESAM モード同期と KLM 同期発振実験を行った。まず初めに SESAM モード同期実験配置図を図 12 に示す。

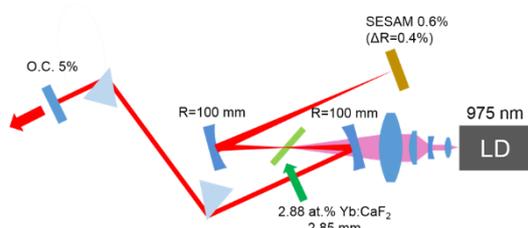


図 12 SESAM モード同期実験系

基本的な構成は SWCNT の時と同様で、SWCNT に集光するためのミラーの場所に SWSAM を置いた構成である。SESAM 上への集光は共振器の非対称性を用いて行った。この時最も短いパルス幅が得られた時の発振スペクトルと自己相関波形を図 13 に示す。

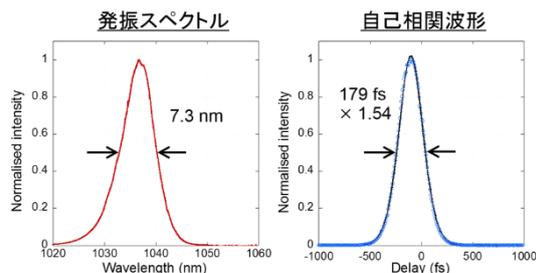


図 13 SESAM モード同期時の発振スペクトルと自己相関波形

GDD は約-3800 fs<sup>2</sup>、励起パワー12 W、最大平均出力 1.1 W、繰り返し周波数 81 MHz 時にパルス幅 179 fs であり、SWCNT を用いたモード同期と比較して O.C. 5%のものを使用したこともあり、高出力化の面では勝っているが、100 fs を切るような短いパルス幅は現状得られなかった。

次に KLM の実験配置図を図 14 に示す。

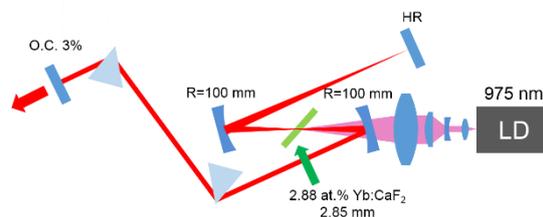


図 14 SESAM モード同期実験系

図 12 の SESAM の代わりに HR ミラーを設置しモード同期発振実験を行った。この時得られたスペクトルを図 15 に示す。

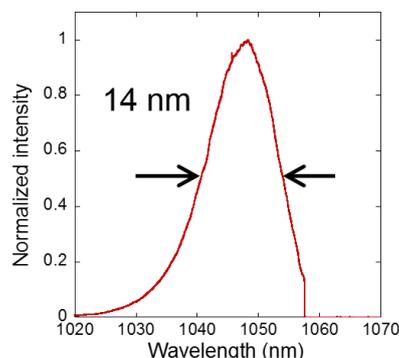


図 15 KLM 時の発振スペクトル

KLM は GDD が-3800 fs<sup>2</sup>の時に得られたが、非常に不安定で自己相関波形を取るこ

とができなかった。この時の最大平均出力は 1.6 W、繰り返し周波数は 81 MHz、O.C.の透過率は 3%であった。発振スペクトルからフーリエ限界パルスを計算すると約 90 fs ほどなので、仮にフーリエ限界パルスが得られていたと仮定しても SWCNT を用いたモード同期の方が KLM と比較しても短パルスを得られた。

#### 4. まとめ

本研究では数十~数百 fs ほどの非常に早い緩和時間と 1~2 $\mu$ m と非常に広い吸収帯域幅を持つ SWCNT をモードロッカーとして用い超短パルスレーザー光源の開発を行った。利得媒質としては Yb:CaF<sub>2</sub> を用いた。Yb:CaF<sub>2</sub> は比較的高い熱伝導率と広く滑らかな蛍光スペクトルを持ち、高出力な超短パルスレーザーを実現できると期待される。また、SWCNT アシストカーレンズモード同期にすることによって SWCNT に不足していた深い変調幅を得ることができ、結果として O.C. 3%の時に平均出力 260 mW、パルス幅 87 fs、O.C.1 %の時に平均出力 94 mW、パルス幅 77 fs を実現した。これらの結果は現在報告されている SWCNT を用いたモード同期 Yb 添加固体レーザーと比較して高出力かつ短パルスを得ることができたと考えられる。

今後の展望としては、O.C.の透過率が 1%や 0.3%の実験系はナイフエッジやプリズムの挿入量をコントロールして共振器内に損失を与えながらモード同期を得た。これは損失を与えなかった場合は SPM と材料による正常分散がプリズムによって与えられる負分散よりも大きくなり共振器全体が正常分散となりマルチパルス化してしまうためである。このナイフエッジなどの損失を無くしプリズム間距離を伸ばし負分散の値を大きくすれば、SPM の量が大きくなった分短パルスを達成できると考えられる。また、共振器内パワーも上がり、光カー効果

による変調深さも増えるので O.C. 0.3%の時に見られた CW 成分も抑えられると考えられる。このように O.C.の透過率を変える場合その O.C.に最適なプリズムの距離を探す必要がある。

変調深さを稼ぐ方法として純粹に深い変調幅を持つ SWCNT 試料で実験を行い、短パルスを得るという方法が考えられる。しかし、単に SWCNT の変調の深さを上げようとする濃度を上げる必要があり、SWCNT 試料上での散乱や非飽和損失の値なども大きくなってしまい O.C.の透過率を下げることで上げた共振器内パワーが下がってしまう恐れがある。したがって適切な濃度の SWCNT 試料を用い、実験を行うことが重要である。そのため、変調の深さを大きくする方法として SWCNT で稼ぐのではなく、カーレンズ効果で変調の深さを得る方法も考えられる。例えば、今回実験で用いた SWCNT 試料はシリカガラス上にスピコートした試料を用いたが、非線形屈折率が高い例えば YAG などの Kerr 媒質上に SWCNT をスピコートすることによって共振器内で引き起こる光カー効果の影響を大きくし、より深い変調深さを得るなどである。

#### 5. 参考文献

- [1] W. B. Cho *et. al.*, Adv. Funct. Mater. **20**, 1937-1943 (2010).
- [2] Frédéric Druon *et. al.*, Optical Materials Express **1**, 489-502 (2011)
- [3] A. Schmidt *et. al.*, Opt. Express **22**, 20116 (2009).
- [4] Y. Zhang *et. al.*, Opt. Express **23**, 5640 (2014).