

Tm³⁺:RE₂O₃(RE=Sc,Lu)を用いたカーレンズモード同期レーザーの開発

戸倉川研究室 鈴木 杏奈

1. はじめに

超短パルスレーザーは、ピコ秒～フェムト秒といった短い時間の間に非常に高強度の光を発生させることができるといった特徴を持ち、学術的な研究や産業、医療応用等に広く用いられている。中でも 2 μm 帯という波長帯のレーザーは、従来の 1 μm 帯や 1.5 μm 帯、10 μm 帯等のレーザーとは異なる性質を持つことから、新たな応用への可能性が期待されている。例としては、2 μm 帯に加工に適した吸収を有する[1]ポリマーの精密加工や、非線形吸収を利用したシリコン材料のステルス加工[2]、水の吸収を用いたレーザーメス[3]、LIDAR[4]や環境計測などがある。また、光パラメトリック発振[5.6]や超広帯域連続光発生[7]の基本波としての応用が挙げられ、これは従来の 1 μm 帯や 1.5 μm 帯のレーザーでは吸収が強く用いることが困難であった非酸化物系 (ZnGeP₂ 等) やガラス材料が波長 2 μm 帯では吸収が低下し利用可能となり、分子の指紋領域と呼ばれる分子の吸収線が多数存在する 2.5~10 μm の中赤外領域への波長変換が可能となる。また、高次高調波発生[8]では基本波の波長 λ の λ⁴ で高次高調波のカットオフ周波数が決定するため、1 μm 帯や 1.5 μm 帯に比べ波長 2 μm 帯ではより短波長、軟 X 線領域への波長変換が可能となることから高い注目を集めている。上記のような幅広い応用の実現へ向け、波長 2 μm 帯の短パルス光の直接発生が可能な Tm³⁺添加 媒質を用いたバルク型固体モード同期レーザーの開発、および高出力化、高効率化、短パルス化を目指し研究を行ってきた。本研究では、特に短パルス化に焦点を当て、波長 2 μm 帯における現在の世界最短パルスの発生を目標とした装置開発および共振器構成の最適化を行った。

2. 原理

2.1 Tm³⁺:RE₂O₃(RE=Sc,Lu)の特徴

より短いパルスの発生を目指したモード同期レーザーの利得媒質に必要となる条件として、利得帯域幅が広帯域であることが挙げられる。それはモード同期レーザーで得られるパルス幅とスペクトル幅が

$$\Delta\nu \cdot \Delta\tau \geq k \quad (2-1)$$

という関係で結ばれているためである。この等式が成立するときのパルスをフーリエ限界パルスという。定数 k は、パルスの形に依存した値をとり、ガウス型パルスの場合は 0.441、sech² 型パルスの場合は 0.315 である。

本研究で用いた Tm³⁺:RE₂O₃ は Tm 添加媒質の中でも長波長の波長 2000 nm 以上の領域に広帯域な利得スペクトルを有する。図 2-1 に Tm:RE₂O₃ の利得スペクトルを示す[9.10]。これらの媒質は 1950 nm 以下の波長領域に存在する水蒸気の強い吸収を避け、パージフリーで安定したレーザー動作が可能である。

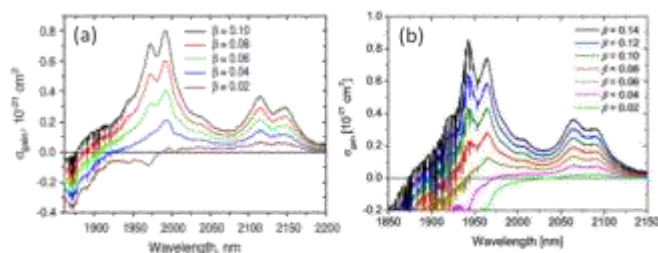


図 2-1 利得スペクトル (a)Tm³⁺:Sc₂O₃, (b)Tm³⁺:Lu₂O₃

また、他の代表的な Tm 添加媒質である Tm:YAG や Tm:YLF に比べ[11.12]広帯域な利得スペクトルと大きな利得断面積を有し、また高い熱伝導率や小さな熱光学定数など熱機械特性にも優れる[13]。このように高出力な超短パルスレーザーの利得媒質として優れた性質を示す。

2.2 Tm³⁺の励起法

Tm³⁺の励起法には代表的に 2 つの手法があり、それぞれ 800 nm 帯、1600 nm 帯の光源を用いて励起を行う。それぞれの概念図を図 2-2 に示す。

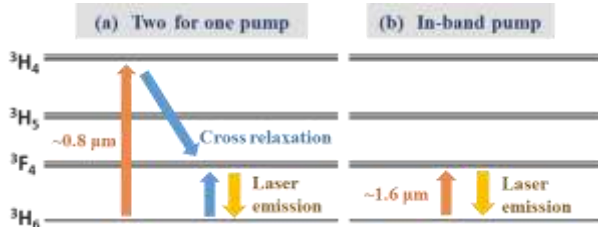


図 2-2 Tm³⁺のエネルギー準位図と励起スキーム

1 つは、図 2-2(a)に示すような two for one pump と呼ばれる励起スキームである。800 nm 帯のレーザーによって基底準位の Tm³⁺イオンが ³H₄ へ励起されると、そのイオンが ³F₄ へ非放射緩和する際に隣接した Tm³⁺イオンへとエネルギーを譲渡することで基底状態のイオンが ³F₄ へ励起される。このクロス緩和というイオン間相互作用により、1 つの光子の吸収により 2 つのイオンをレーザー準位に励起することができる。これにより、量子効率が 2 に迫る高効率な動作が可能となる。しかし、クロス緩和を効率良く発生させるためには Tm³⁺イオン同士の距離が十分に近くなくてはならないため、Tm³⁺の高濃度添加が必要となる。添加濃度が高くなると、局所的な熱の発生による問題や、反転分布量が大きい際に ³F₄ に近接して存在する 2 つのイオンが Energy Transfer Upconversion というイオン間相互作用により一方は基底準位に脱励起、もう一方は ³H₄ や ³H₅ の上準位に遷移してしまい効率が低下するという問題が生じうる。一方、図 2-2(b)に示す in-band 励起では、量子効率が 2 に迫るような動作はできないものの、量子欠損が小さく、また高濃度添加が不要である。量子欠損 Q_{def} は励起光子と放射緩和する光子のエネルギーの差であり、

$$Q_{def} = h\nu_{pump} - h\nu_{laser} = h\nu_{pump} \left\{ 1 - \frac{\lambda_{pump}}{\lambda_{laser}} \right\} \quad (2-2)$$

で与えられる。 $h\nu_{pump}(h\lambda_{pump})$ 、 $h\nu_{laser}(h\lambda_{laser})$ はそれぞれ励起光の周波数 (波長)、レーザーの周波数 (波長) を表す。これより、図 2-2(b)の励起スキームの方が熱として発生するエネルギーが小さく、高出

力化に適している。よって本研究では in-band 励起を採用した。

また、図 2-2(a)の励起スキームでは高出力かつ高ビーム品質な Ti:Al₂O₃ や高効率かつ高出力な LD(Laser Diode)が励起光源として用いられるが、Ti:Al₂O₃ は非常に低効率なために全体効率を強く制限してしまい、また LD はビーム品質が悪く、今回カーレンズモード同期を用いるにあたり重要となるレーザー光とのモードマッチが難しくなる。よって本研究では、波長 1600 nm 帯のファイバーレーザーを励起光に用いることで Ti:Al₂O₃ レーザーよりも高効率、かつ高安定、高ビーム品質な励起を可能とした。

2.3 モード同期

超短パルス光 (ps~fs) を発生させる手段としてモード同期法がある[14]。モード同期法とは、光が共振器を周回する時間に同期するように光に変調を加えパルスが発生させるものである。モード同期の概念図を図 2-3 に示す。

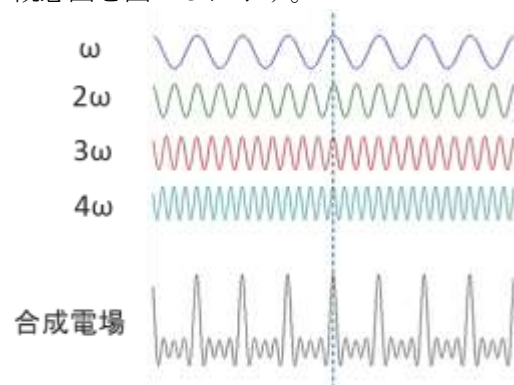


図 2-3 モード同期の概念図

レーザー共振器内では、レーザー利得帯域内の周波数が共振器の縦モード間隔 c/L (c : 光速、 L : 共振器一周の長さ) で発振しており、多数の縦モードが存在している。ここで、周波数が c/L に一致した変調を与えると各縦モードに $\pm c/L$ のサイドバンドが生じ、このサイドバンドが隣のモードと結合することでモード間の位相が揃っていく。これをモード同期といい、多数のモードの位相が揃うことで、図 2-3 のように時間的に鋭いピークをもったパルスを得ることができる。モード同期

パルスは式(2-1) $\Delta\nu \cdot \Delta\tau \geq k$ の関係を有しており、周波数と時間の間にフーリエ変換の関係を示す。

モード同期には、AOM(Acousto-Optic Modulator)や EOM(Electro-Optic Modulator)を用いて外部から変調を与える能動モード同期と、可飽和吸収体や非線形光学効果を用いることにより外部から変調を加えることなく共振器内で受動的に変調を起こす受動モード同期の2種類がある。歴史的には能動モード同期が最初に実証され、ナノ秒からピコ秒、そしてフェムト秒へと短パルス化が進んでいく中で AOM や EOM の機器の性能としての限界を脱するため受動モード同期が広く普及していき、様々な手法が研究、開発されている。本研究では、受動モード同期の一つであるカーレンズモード同期を使用した。

2.4 カーレンズモード同期

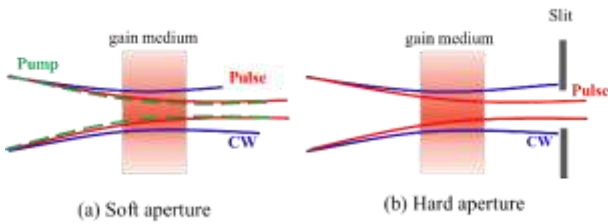


図 2-4 カーレンズモード同期の概念図
(a)ソフトアパーチャー効果 (b)ハードアパーチャー効果

カーレンズモード同期の概念図を図 2-4 に示す。3 次の非線形光学効果である光カー効果は、物質に光が入射した際に

$$n(\omega, I) = n(\omega) + n_2 I \quad (2-3)$$

という光強度に依存した屈折率の変調が誘起される現象である。入射したビームの空間的な強度分布に応じ屈折率はレンズ状の分布となり、その結果光は自己収束する。この現象を用いて、光が自己収束した時に励起光のビームとの空間的なモードマッチが良くなるよう共振器を設計することで強度の強い光がより大きい利得を得ることができ、利得変調を得ることができる。これをカーレンズモード同期のソフトアパーチャー効果と呼ぶ(図 2-4(a))。また、図 2-4(b)のようにスリットを設置することで強度が弱い光に損失を与える損失変調

によってもモード同期を得ることができる。これをハードアパーチャー効果と呼ぶ。

カーレンズモード同期の応答速度は光と物質の相互作用の時間によって決定しているため、SESAM 等の可飽和吸収体に比べ非常に高速である。また、ソフトアパーチャー効果では利得変調であるため変調の機構による損失を受けないため、短パルスの発生に適した手法となっている。よって、本研究ではカーレンズモード同期のソフトアパーチャー効果を使用した。共振器の設計については、まず構成を非点収差補償[15]のため Z 型共振器とし、自己無撞着法[16]を用いた光線行列計算によって共振器を周回するレーザーの cw 時のビーム半径を計算した。ビーム半径の計算結果を図 2-5 に示す。媒質におけるビーム径の計算結果 $36 \mu\text{m}$ (水平方向) \times $31 \mu\text{m}$ (垂直方向) よりも励起光のビーム径がわずかに小さく集光されるよう、励起光を集光するレンズ系を構築した。

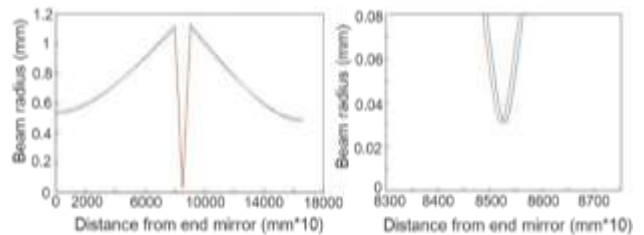


図 2-5 共振器内のビーム半径の計算結果

3. $\text{Tm}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ を用いたレーザー実験

3.1 実験構成

カーレンズモード同期 $\text{Tm}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ レーザーの実験構成を図 3-1 に示す。

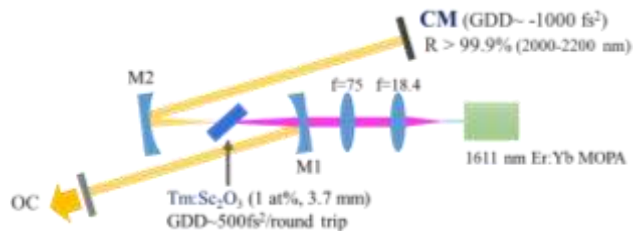


図 3-1 $\text{Tm}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ レーザー実験構成

共振器は 4 枚のミラーのみで構成されるシンプルな Z 型共振器である。利得媒質は $\text{Tm}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ (1 at.% 添加、結晶長 3.7 mm) 単結晶を凹面鏡($R=100$

mm) の間にブリュースター角で配置した。励起光源には波長 1611 nm Er:Yb 全ファイバー-MOPA[17] を用いて in-band 励起を行った。当研究室で以前開発された同利得媒質を用いたレーザー[18]では分散補償にプリズム対を用いていたが、本研究では更なる短パルス化に向け低損失な共振器構成を構築するため、分散補償鏡 (GDD \sim -1000 fs²) を代わりに用いた。また、以前は出力鏡の透過率 1% のミラーを用いていたが、これと合わせより透過率の低い T=1%, 0.5%, \sim 0.3% の 3 種類を用いて実験を行った。モード同期を得るためには M2 の凹面鏡を前後に動かすことによって摂動を与えた。

3.2 実験結果

各出力鏡を用いた際、それぞれ安定したモード同期が繰り返し周波数 94 MHz において得られた。パルストレインおよび RF スペクトルを図 3-2 に示す。

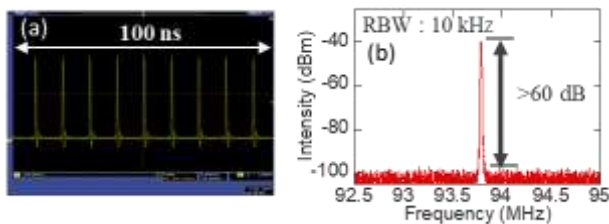


図 3-2 (a)パルストレイン (b)RF スペクトル

透過率 1% の出力鏡を用いた際のモード同期の出力特性を図 3-3(a)(c)(e)に示す。

このとき、最高平均出力である 220 mW が得られた。パルス幅は 80 fs、スペクトル 65 nm が中心波長 2141 nm であった。パルス幅は Si プレートによる外部圧縮後の値であり、時間帯域幅積 0.340 とフーリエ限界に近いパルスが得られた。パルスエネルギーは 2.3 nJ、ピーク強度は 29.0 kW であった。

次に透過率 0.5% の出力鏡を用いた際のモード同期の出力特性を図 3-3(b)(d)(f)に示す。

このとき、最短パルス幅 72 fs (圧縮後) が平均出力 130 mW において得られた。スペクトル幅は 67 nm、中心波長は 2108 nm であり、パルスエネル

ギーは 1.4 nJ、ピーク強度は 19.2 kW であった。図 3-3(d)のスペクトルに見られる狭線幅のサイドピークは、ソリトンモード同期のスペクトルに特徴的にみられるケリーサイドバンドであると考えられる。

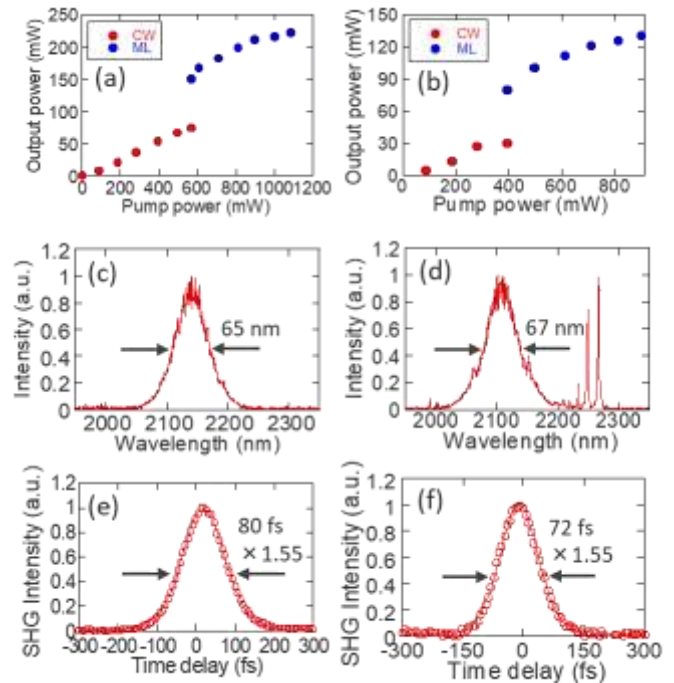


図 3-3 KLM Tm:Sc₂O₃ レーザ出力特性
出力の励起パワー依存性(a)1%OC, (b)0.5%OC
スペクトル(c)1%OC, (d)0.5%OC
パルス幅(e)1%OC, (f)0.5%OC

次に、透過率 \sim 0.3%の出力鏡を用いた際のモード同期の出力特性を図 3-4 に示す。

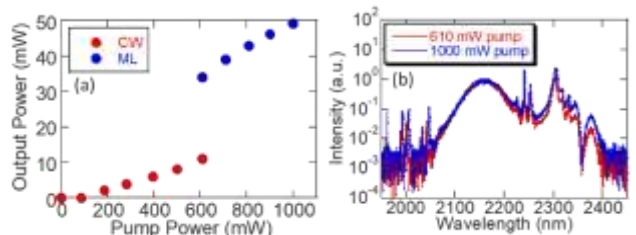


図 3-4 Tm:Sc₂O₃ レーザ出力特性(\sim 0.3%OC)
(a)出力の励起パワー依存性 (b)スペクトル

平均出力 34 mW 時にモード同期がスタートし、この時図 3-4(b)に示すように、モード同期パルスに一般的にみられる sech² 型のスペクトルの長波長側の領域 (2250-2350 nm) にスペクトル成分が出現していることが確認された。励起パワーを上げていくと、この長波長側の成分のみが成長していく様子が見られ、最大平均出力 50 mW 時には

図 3-4(b)の青線のようなスペクトルが得られた。図 3-5 に $\text{Tm}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ の誘導放出スペクトルを示す。誘導放出スペクトルは、今回使用した励起光源(波長 1611 nm Er:Yb MOPA) を用いて実際に計測したものである。

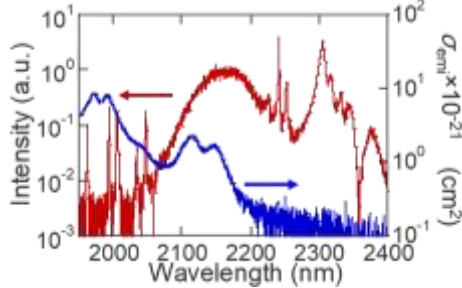


図 3-5 モード同期パルススペクトル (赤)
 $\text{Tm}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ 誘導放出スペクトル (青)

図 3-5 のように、長波長側のスペクトル成分が出現した領域は利得帯域外の領域であり、 $\text{Tm}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ 自身の蛍光ではないことが分かる。

この広帯域化の現象は共振器内で誘導ラマン散乱(SRS)が発生したことによるものであると考えられる。この現象の詳細な考察については次節にて述べるが、得られたスペクトルから計算されるフーリエ限界パルス幅は約 38 fs であり、長波長成分が sech^2 型のソリトンモード同期パルスのスペクトルと位相整合がとれていればこのような短パルスの発生が十分に可能であることを示唆している。

4. スペクトルの広帯域化について

スペクトル広帯域化の現象は、誘導ラマン散乱に起因するソリトン自己周波数シフト (SSFS: Soliton Self-Frequency Shift) [19] であると考えられる。これはファイバー中の非線形現象として報告されたものであり、ps 以下の超短パルスをファイバーに入射すると、入射パルスの高周波成分が種光となって SRS を引き起こし、自身の低周波側にエネルギーを譲渡していくという現象である。本研究では、低損失な共振器構成をとったことにより SSFS に似た現象が共振器内で発生した結果、図 3-4(b)のようなスペクトルが得られたのだと考えられる。図 4-1 に $\text{Tm}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ のラマン利得スペクトルおよび分散補償鏡の反射帯域を示す。

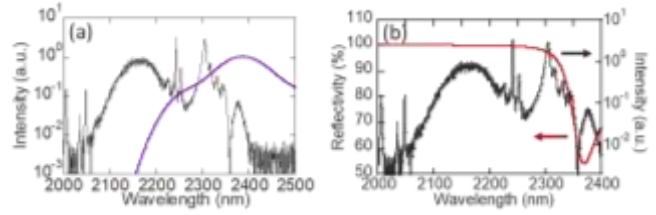


図 4-1 (a)モード同期スペクトル (黒) および
ラマン利得スペクトル (紫)
(b)モード同期スペクトル(黒)とエンドミラーの反射率(赤)

図 4-1(a)より、長波長側のスペクトル成分はラマン利得の帯域内に存在していることが分かる。しかしラマン利得がより大きくなる 2300 nm 以上の領域では図 4-1(b)に示すようにミラーの反射率が大きく低下する。よって、 $\text{Tm}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ のラマン利得と共振器を構成するミラーの反射帯域のバランスによって長波長側のスペクトル成分が発生する波長が決定されたと考えられる。

この共振器内スペクトル広帯域化について、よく似た現象が 2019 年に報告された[20]。この論文では、Yb 固体レーザーにおいて同様のスペクトル広帯域化を利用し 22 fs という短パルスの発生を実現している。このような実証例があることから、本研究でも sub40 fs にもなる短パルスの発生を見込み自己相関波形の計測を行った。しかし図 4-2(a)に示すようにパルス幅~115 fs と、想定していた短パルスを得ることはできなかった。

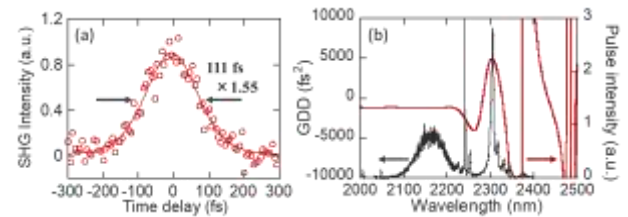


図 4-2 (a)自己相関波形 (~0.3%OC) , (b)モード同期
スペクトル (黒) , 分散補償鏡の GDD (赤)

この理由としては、図 4-2(b)に示すように、本研究で使用した分散補償鏡の GDD の値が 2280 nm 以上の領域で正常分散を示しており、パルスがチャープしてしまっているためであると考えられる。よって現状ではスペクトルの広帯域化の現象は短パルス化には寄与していないものと思われる。しかし共振器構成の最適化を行うことで短パルスの発生は十分に可能であると考えられる。

5. Tm:Lu₂O₃を用いたレーザー実験

共振器はTm:Sc₂O₃レーザーと同じものを用い、利得媒質および励起光源を変更し実験を行った。利得媒質はTm³⁺:Lu₂O₃ (1.5 at.%添加、結晶長4 mm) セラミックを用い、励起光源には波長1629 nm ラマンファイバーレーザーを用いて in-band 励起を行った。このとき、出力鏡には透過率1%のミラーを用いて実験を行った。

モード同期が得られた際の出力特性を図5-1に示す。

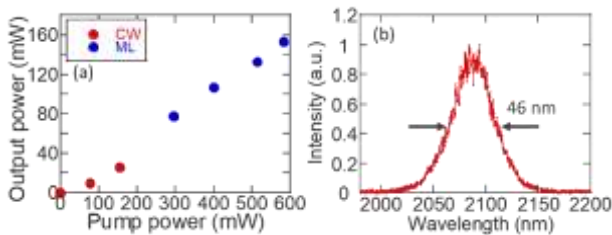


図5-1 KLM Tm:Lu₂O₃レーザー出力特性 (1%OC)
(a)出力の励起パワー依存性 (b)最大出力時スペクトル

このとき、最大平均出力153 mW時において、スペクトル幅46 nmのモード同期パルスが得られたものの、モード同期が不安定であり、すぐに外れてしまうといったような問題が生じた。そのため、自己相関波形を計測する間モード同期を維持することができず、パルス幅の計測を行うことができなかった。この不安定性の原因については、励起光源のラマンレーザーがセルフパルシングによる不安定性を生じていたことが起因していると考えられる。ラマンレーザーのセルフパルシングの様子を図5-2に示す。

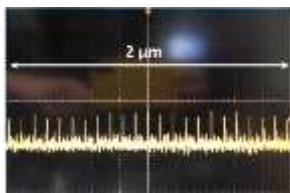


図5-2 ラマンファイバーレーザーの出力の時間波形

モード同期の安定性の向上およびパルス幅の計測のためには励起光源の安定性を改善させる必要がある。これについては今後の課題とする。

6. まとめおよび今後の展望

本研究では波長2 μm帯モード同期レーザーの短パルス化を目的として、Tm³⁺:RE₂O₃(RE=Sc, Lu)を用いたカーレンズモード同期レーザーの開発を行った。Tm:Sc₂O₃を用いた実験において、1%の出力鏡を用いた際に最大平均出力220 mW、パルス幅80 fsのモード同期パルスが得られ、0.5%の出力鏡を用いた際には最短パルス72 fsが平均出力130 mWにおいて得られた。また、より低損失な共振器構成にすることにより利得帯域幅の限界を大きく超えたスペクトル広帯域化の現象が得られ、従来の限界を大きく超えた共振器直接出力での短パルス発生の可能性を示した。また、Tm:Lu₂O₃を用いた実験においてはこの媒質を用いたカーレンズモード同期レーザーを世界で初めて実証した。

今後は、励起光源であるラマンレーザーの安定化を図ることでTm:Lu₂O₃レーザーの安定性を向上させるとともに、Tm:Sc₂O₃同様にスペクトルの広帯域化を試みる。同時に、共振器構成の最適化によりスペクトル広帯域化の現象を利用した短パルスの発生と計測を試みる。

参考文献

1. Ilya Mingareev et al., Optics & Laser Technology, **44**, 2095(2012).
2. M. Kumagai et al., IEEE Transaction on Semiconductor Manufacturing **20**, 259(2007).
3. Nathaniel M et al., Journal of Endourology, **19**, 1089(2005).
4. K.Mizutani et al., Opt. Lett. **43**, 202(2018).
5. Godard, C. R. Phys. **8**, 1100 (2007).
6. Schliesser et al., Photonics **6**, 440 (2012).
7. A.M.Heidt et al., Opt. Express **21**, 24281 (2013).
8. Kevin F. Lee et al., Opt. Letters **42**, 1113 (2017).
9. A. A. Lagatsky, et al, Optics Letters, **37**, 437 (2012).
10. O. L. Antipov et al., Opt. Material Express, **2**, 183(2012).
11. M.Yokota et al., Applied Optics, **37**, 2526(1998).
12. R.Faoro et al., Opt.Lett.**37**, 1517(2012).
13. P. Koopmann, Ph.D thesis, Uni. HH (2010).
14. 三沢和彦, 日本物理学会誌, **50**, 463(1995).
15. Herwig W et al., IEEE Journal of quantum electronics, **QE-8**, 373(1972).
16. ヤリーヴ・イェー著 “原書6版 光エレクトロニクス 基礎編”, 丸善株式会社(2014).
17. E. Fujita et al., Opt. Express **24**, 26255 (2016).
18. M. Tokurakawa et al., Opt. Letters **42**, 3185 (2017).
19. F.M.Mitschke et al., Opt. Lett. **11**, 659(1986).
20. S. Kimura et al. Scientific Reports **9**, 3738(2019).