

Yb 添加 CaF₂ セラミックを用いたモード同期レーザーの開発

白川晃研究室 松岡智明

1. 序論

レーザー共振器内の縦モードの間隔と位相関係を揃えることをモード同期という。これによって得られる超短パルスレーザーは、高いピークパワーと短いパルス幅を有しており、その性質を活かした応用は多岐にわたる。特に固体レーザーにおいては難加工材料の加工や非熱加工、微細加工などの加工技術に有用である。ゆえに更なる短パルス化、高出力化を目指す研究は現在も盛んに行われている。中でも、高出力、高効率なレーザー発振を可能とする Yb 添加固体利得媒質を用いた研究に注目が集まっている。本研究では、この母材の構造として特にセラミックに注目して研究を行った。当研究室では 2021 年に La,Yb:CaF₂ セラミック媒質 2 枚を兼ね合わせることによって世界初の Kerr レンズモード同期 (KLM) を達成し、発振スペクトル幅 14.74 nm、パルス幅 82 fs、平均出力は 8.9 W 励起で 132 mW を報告している[1]。しかし媒質 2 枚では境界面の光散乱損失があるため、媒質 1 枚で達成することで更なる高出力化が見込まれた。

本研究で用いた媒質は共同研究先である株式会社ニコンより提供された 3%La2%Yb 共添加、試料厚 5.3 mm の CaF₂ セラミックで、光吸収損失を生じるフォトダークニング効果の抑制がなされた材料である。この媒質を用い、ブロードストライプ LD 直接励起にて、CW レーザー発振および SESAM モード同期を実現した。

2. 原理

2.1 La,Yb:CaF₂ セラミックの特徴

フッ化カルシウム (CaF₂) の固体結晶は立方

晶系であり、9.7 W/m・K [2]と高い熱伝導率を示す。これに準 2 準位の原子種である Yb³⁺ を添加した Yb:CaF₂ は、高い熱伝導率に加え高い量子効率、さらには約 70 nm と広い蛍光スペクトルも兼ね備えた利得媒質である。固体媒質の構造にはガラス、単結晶、セラミックがあるが、中でもセラミックは単結晶と比較して遜色のない光学特性や熱特性に加え、単結晶より優れた機械特性を有し、作製自由度も高い。また、ガラスと比較しても熱伝導率が優れている。ゆえに、既存のガラス及び単結晶の媒質に変わる新しい固体利得媒質として研究が盛んに行われている。Yb:CaF₂ をセラミック化する際に注意しなければならないのは、発振に寄与しない Yb²⁺ の生成を抑止することである。そこで本研究で用いたセラミック媒質は、微量の La³⁺ を共添加することで Yb²⁺ の生成を抑止している。La,Yb:CaF₂ セラミックの蛍光スペクトルを図 1 に示す。

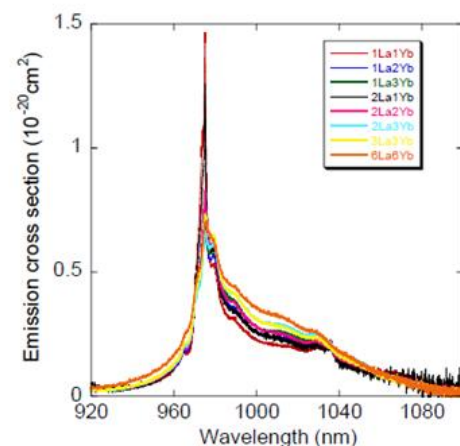


図 1 La,Yb:CaF₂ セラミックの
蛍光スペクトル [3]

La を共添加したセラミック媒質の蛍光スペクトルは添加濃度によってブロードに変化しますが、単結晶と比較しても遜色ない広いスペクトル幅を有している。

2.2 モード同期

レーザー発振は、そのレーザー光強度の時間波形によって CW (Continuous Wave) 発振とパルス発振に大別される。パルス発振において、パルス幅 $\Delta\tau$ と周波数スペクトルの広がり $\Delta\nu$ との関係は、パルスの形状によって異なる定数 Λ を用いて (1) 式で表される。

$$\Delta\tau \cdot \Delta\nu \geq \Lambda \quad (1)$$

このように、より狭い幅のパルス光を得るためには、より広い光の周波数スペクトルが必要である。パルス生成には縦モード間の位相関係も関わっており、それによってパルスの形状が変化する。フーリエ限界（時間帯域幅積が最小になる状態）に近いパルスを得るためには、縦モード間の間隔と位相関係を揃える必要がある。この手法をモード同期といい、図 2 のように光の重ね合わせの原理を利用している。

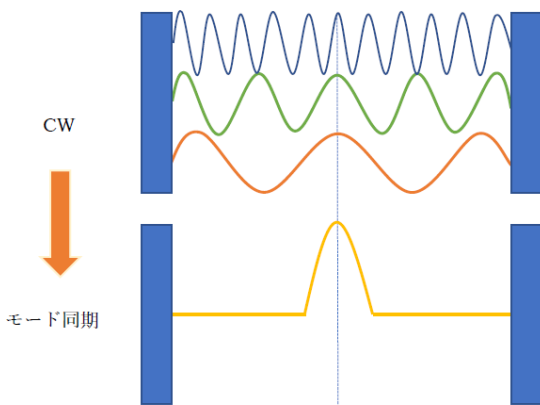


図 2 モード同期の概念

モード同期を実現する手法は、能動モード同期と受動モード同期に大別される。本研究で用いた受動モード同期は共振器内部で非線形光学効果を起こし、素子が受動的にモード同期を行う手法

である。受動モード同期では自発的に変調を生じるため、応答速度が速く、超短パルスを生成できる。

2.3 SESAM モード同期

受動モード同期の非線形光学材料として最も一般的に用いられているのは可飽和吸収体である。可飽和吸収体は入射光の強度に応じてその吸収特性が変化する材料で、低強度の光は大きく吸収され、高強度の光は吸収が少ない。半導体材料からなる可飽和吸収体と鏡を一体としたものが SESAM である[4]。SESAM の概念図を図 3 に示す。



図 3 SESAM 概念図

低強度の光（CW 光またはパルス光の低強度部分）には可飽和吸収体層が吸収を起こすため損失として作用する。一方で高強度の光（パルス光）は可飽和吸収体の吸収を飽和させるので、あまり吸収されずミラー層にまで到達する。これにより、光強度に応じて異なる反射率が与えられるので、モード同期を実現できる。SESAM モード同期には自己始動が可能という利点がある。一方でダメージに弱く、意図しない Q スイッチモード同期（共振器内の損失を制御して実現するモード同期）が生じる可能性がある。SESAM を用いたフェムト秒パルスレーザーにおいて、Q スイッチモード同期を避け、安定的な CW モード同期を得るための近似した条件式は、

$$P^2 > F_{sat.L} \cdot A_{eff.L} \cdot F_{sat.A} \cdot A_{eff.A} \cdot \frac{\Delta R}{\tau_R^2} \quad (2)$$

である[5]。P は共振器内平均レーザーパワー、 $F_{sat.L}$ は媒質の飽和フルエンス、 $A_{eff.L}$ は媒質中の有効レーザーモード面積、 $F_{sat.A}$ は

SESAM の飽和フルエンス、 $A_{eff,A}$ は SESAM 表面の有効レーザーモード面積、 ΔR は SESAM の変調深さ、 τ_R は共振器を光が往復する時間である。(2) 式から、 Q スイッチモード同期を避けるためには、

- (1) SESAM および媒質は飽和フルエンスの小さいものを使う
 - (2) SESAM は変調深さの小さいものを使う
 - (3) SESAM 表面および媒質中のビーム径は小さくなるよう設計する
 - (4) 共振器長は長く設計する
 - (5) レーザーパワーを上げる
- ことが有効である。

2.4 カーレンズモード同期

非線形媒質の屈折率 $n(x,y)$ は透過光強度 $I(x,y)$ を用いて

$$n(x,y) = n_0 + n_2 I(x,y) \quad (3)$$

と表せる。 n_0 、 n_2 はそれぞれ線形屈折率、非線形屈折率である。(3) 式のように透過光の強度によって屈折率を変化させる現象はカー効果と呼ばれる。高強度のガウシアンビーム光が媒質に入射すると、カー効果によって媒質の屈折率はレンズ状の分布となる（カーレンズ効果）。これによって、高強度の光ほど中心部に集まり、低強度の光ほど周辺部へ分布させられる。この状態を利用し、強度によって異なる利得・損失変調を持たせモード同期を起こす手法が KLM である。KLM は SESAM モード同期と比べ応答が速く、更なる短パルス化が可能である。KLM には、低強度であるビーム周辺部に損失変調を持たせるハードアパーチャー KLM と、高強度であるビーム中心部に利得変調を持たせるソフトアパーチャー KLM がある。本研究では励起光のビーム形状制御による利得変調が困難であったことを踏まえ、ハードアパーチャー KLM を採用した。図 4 にハードアパーチャー KLM の概念図を示す。

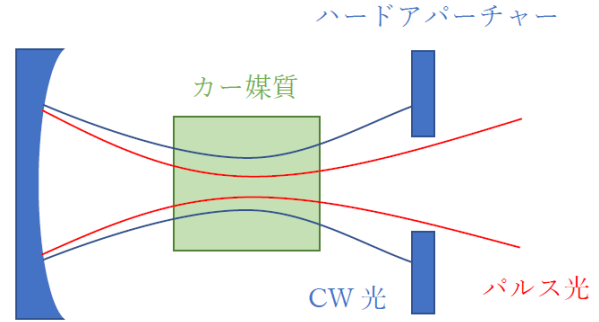


図 4 KLM 概念図

3. 実験

3.1 CW 発振実験

3%La,2%Yb: CaF₂ セラミックをブリュースター角で配置し、白色光を透過させることで吸収スペクトル測定した。その結果を図 5 に示す。

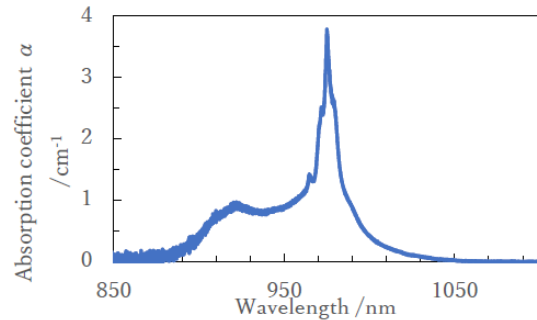


図 5 吸収スペクトル

吸収の中心波長 975.08 nm にて、最大吸収係数は 3.79 cm⁻¹ であった。同媒質を用いて CW レーザー発振における入出力特性を測定した。図 6 に実験系を示す。

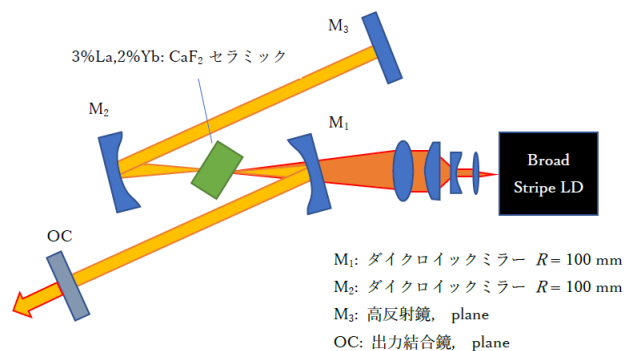


図 6 CW 発振実験系

共振器は曲率半径 $R = 100 \text{ mm}$ のダイクロイックミラー (M_1, M_2) と平板の高反射鏡 (M_3)、透過率を有し出射口としての役割を持つ出力結合鏡 (OC) からなる。 M_1 、 M_2 は収差補償角 8.7° をつけて配置した。励起光を 3 枚のレンズを用いてビーム整形およびコリメートした後、焦点距離 $f = 70 \text{ mm}$ の凸面レンズによって媒質中へ集光した。利得媒質として共振器中心に La 3%、Yb 2% を共添加した厚さ 5.3 mm の La,Yb:CaF₂ セラミックをブリュースター角 (55°) で配置した。結晶は銅製のホルダーに挟み込み、 18°C の流水によって冷却した。

本研究で使用した励起光源はブロードストライプ LD である。Lumics 製の LU09xxU120 で、公称出力は 12 W、公称中心波長は 975 nm である。この励起光の集光地点でビームプロファイルを取得したところ、ビーム半径は $25.74 \times 44.05 \mu\text{m}^2$ であった。図 7 に LD 発振スペクトルの測定結果を示す。

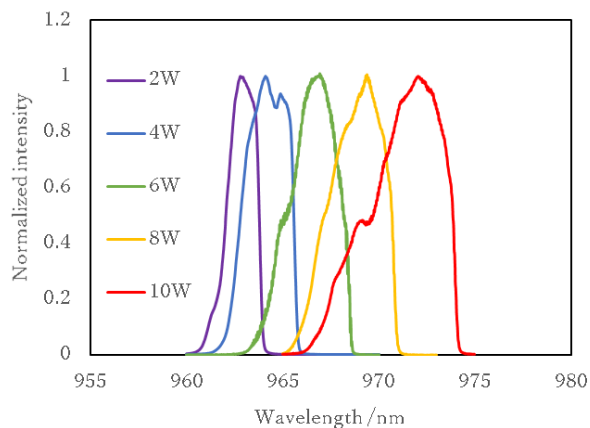


図 7 励起用 LD 発振スペクトル

LD の発振スペクトルは 960 ~ 975 nm の間で推移していた。この LD を用いた La,Yb:CaF₂ セラミック CW 発振の入出力特性を図 8 に示す。OC 透過率 1% のとき、スロープ効率は 5.68%、最大出力 445 mW であった。また、透過率 3% では、スロープ効率 12.65%、最大出力 1.06 W であった。

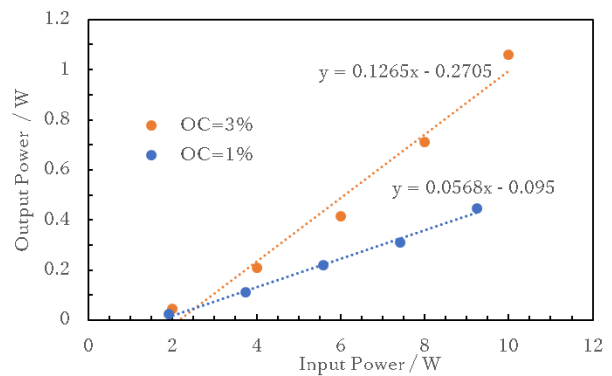


図 8 CW 発振入出力特性

特に透過率 3% では入力を増大させるほど傾きが大きくなっている様子が顕著にみられ、これは LD の出力を上げるほど励起光スペクトルが長波長側へ推移し吸収効率が良くなったためであると考えられる。

3.2 SESAM モード同期発振実験

SESAM モード同期発振の実験系を図 9 に示す。

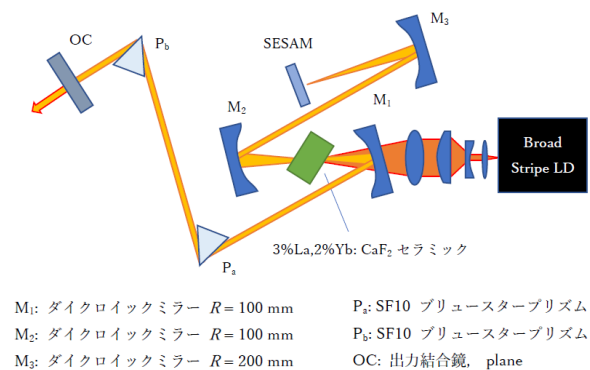


図 9 SESAM モード同期発振実験系

使用した SESAM は波長 1040 nm のレーザー光に対し吸収 0.7%、変調深さ 0.4%、飽和フルエンス $120 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、緩和時間 500 fs である。分散を補償するためにプリズム対を挿入し、挿入量を微小に変化させることで分散量を調整した。この共振器について光学系各要素の光線行列を掛け合わせ、自己無撞着法によって

レーザー光ビーム半径を計算しプロットすることで、図 10 を得た。

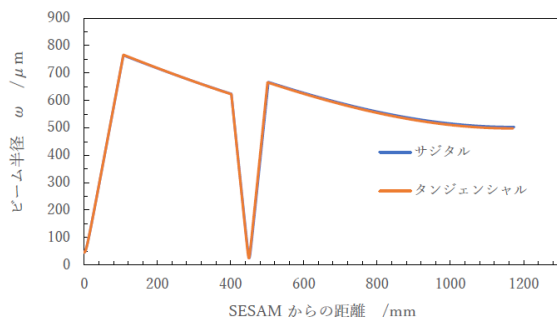


図 10 ビーム半径の位置依存

媒質集光点でのビーム半径は $25\ \mu\text{m}$ と算出された。励起光の短軸半径 $25.74\ \mu\text{m}$ とほぼ一致しており、カップリングは良好であると考えられた。共振器一周あたり約 $-3000\ \text{fs}^2$ の GDD を与えたとき、透過率 0.3%、1%、3% それぞれの OC を用いた共振器で、横モードが多モード化したモード同期が確認された。このときの測定結果を表 1 に、発振スペクトルを図 11 に示す。

表 1 SESAM モード同期特性

OC 透過率	平均出力 /mW	スペクトル幅 /nm
0.3 %	28	8.4
1 %	73	6.4
3 %	459	5.1

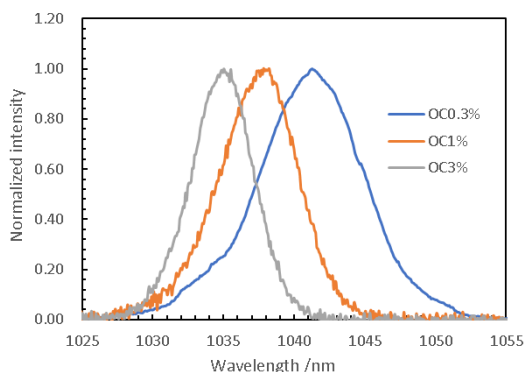


図 11 発振スペクトル

このとき OC の透過率を大きくするほど長波長側で発振しなくなったのは、OC 透過率が高いほど共振器の損失が増大し、より多くの利得が必要になるためである。図 12 に La,Yb:CaF₂ セラミックの小信号利得の例を示す。

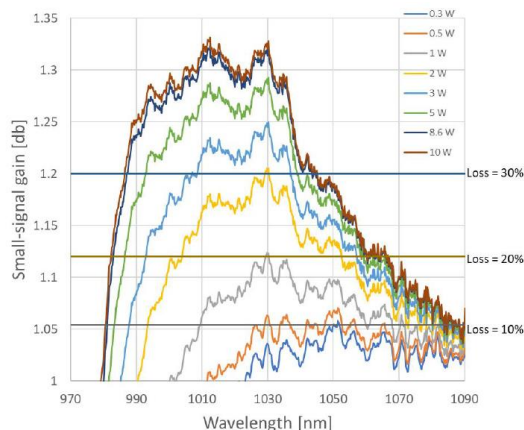


図 12 La,Yb:CaF₂ セラミック小信号利得の例 (2%La,2%Yb) [1]

La,Yb:CaF₂ セラミックは短波長側の方が励起パワーを増加させたときの利得の増加率が大きい。そのため、OC 透過率を大きくするほど長波長側の発振は損失によって抑制され、損失を上回る利得が得られる短波長側でのみ発振が生じたと考えられる。

また、このときのパルストレインは図 13 のように振幅がうなりを伴う形状となった。

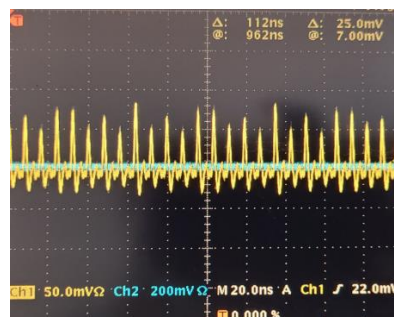


図 13 OC 0.3 %パルストレイン

最も出力の高かった 3%OC について、CW 発振で単一横モードを維持しながら共振器を微調整し、モード同期をかけたところ、図 14 の

ように振幅が一定なパルス列が確認できた。

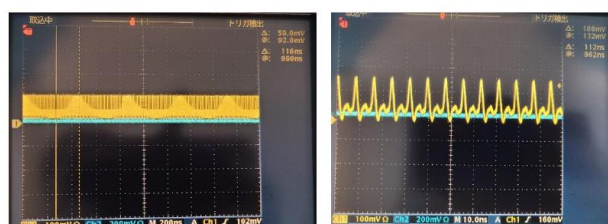


図 14 振幅一定なパルス列

図 14 右の時間スケール 10 ns/div パルス列より、パルス間隔は約 7.8 ns であり、繰り返し周波数は約 128 MHz であった。この結果から、共振器往復長である約 2352 mm に相当するパルス間隔でパルスが生成されていることが確認できた。このとき、最大平均出力は 10 W 励起で 224 mW であった。発振スペクトルを図 15 に示す。

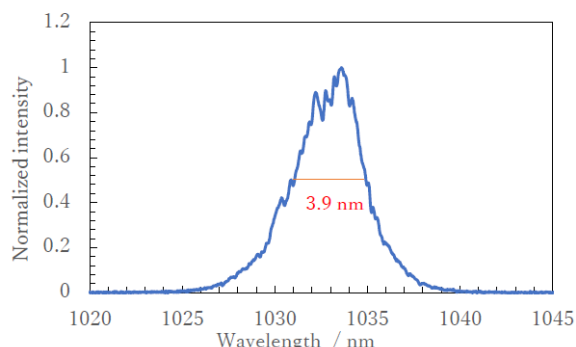
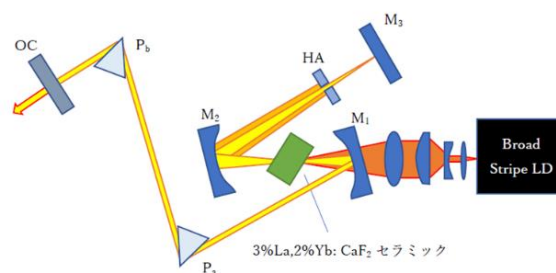


図 15 単一横モードでの発振スペクトル

図 15 はプリズム挿入量を調整することでスペクトル幅を広げ、最大となるところで取得したものである。このときスペクトル幅は半値全幅で 3.9 nm であった。

3.3 KLM 発振実験

KLM 発振の実験系を図 16 に示す。ハードアパーチャーはアイリスを使用し、穴の直径 1 ～ 2 mm 程度で調節しながら実験した。



M₁: ダイクロイックミラー R = 100 mm P₁: SF10 プリュースタープリズム
M₂: ダイクロイックミラー R = 100 mm P₂: SF10 プリュースタープリズム
M₃: 高反射鏡, plane OC: 出力結合鏡, plane
HA: アイリス

図 16 KLM 発振実験系

M₃ 側で集光、OC 側でコリメート光となる安定領域の端でモード同期を探したが、モード同期らしい挙動は確認できなかった。KLM 達成のためにはカーレンズ効果をより大きくすること、出力効率の向上を目指した共振器設計の最適化が課題である。

4 まとめ

本研究では、高い熱伝導率と広い蛍光スペクトルを併せ持つ Yb:CaF₂ に La を共添加してセラミック化した La,Yb:CaF₂ セラミックの、特にフォトダークニングが起こりにくい材料を用いて、CW レーザー発振、および SESAM モード同期発振を達成し、その特性を評価した。今後は同媒質を用い、共振器設計の最適化によって KLM の達成を目指したい。

参考文献

- [1] 中村聡, 電気通信大学大学院, 令和 3 年度 修士論文.
- [2] F.Druon, *et. al.*, Opt. Mater. Express **1**, 489 (2011).
- [3] 北島将太郎, 電気通信大学大学院, 平成 27 年度 修士論文.
- [4] U. Keller, *et. al.*, Opt. Lett. **17**, 505 (1992).
- [5] C. Hönninger, *et. al.*, J. Opt. Soc. Am. B **16**, 46 (1999).