

# 高出力高効率フェムト秒 Yb 固体レーザーの研究

電気通信大学 レーザー新世代研究センター

助教 白川 晃

(平成 19 年度一般研究開発助成 AF-2007211)

キーワード：超短パルスレーザー，希土類三산화物セラミックス，カーレンズモード同期，複合媒質

## 1. 研究の目的と背景

近年超短パルスを用いた超微細レーザー加工の研究が盛んに行われている。しかし現在光源に用いられているチタンサファイアレーザーは固体レーザーの第二高調波を励起に用いるため、電気-光変換効率が 5%程度に限られ装置も大型化するなど、研究の高度化、産業での実用化の上で重大な障害になっている。直接レーザーダイオード(LD)励起できる Yb 系固体材料を用い、高効率・コンパクトな超短パルスレーザーを目指した研究が各国で行われているが、準 3 準位系で強励起が必要なこと、利得帯域が限られることから、高出力・高効率・短パルスの諸特性を満たし産業に供しうる実用光源には至っていなかった。大きなブレークスルーが必要とされていた。

我々は 2003 年より希土類三산화物( $\text{Re}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Re}=\text{Y}, \text{Lu}, \text{Sc}$ )系セラミック媒質を用いた超短パルスレーザー光源の研究開発を行ってきた。代表的なパラメータを表 1 に示す。希土類三산화物は代表的なレーザー結晶である  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (YAG) と比べて熱伝導率が 2 倍程度高く、Yb を添加した際の蛍光自然幅も広い (図 1) など優れた特徴を有しているが、融点が高いことから単結晶では作製が困難であった。中でも  $\text{Y}_2\text{O}_3$  は、2360 度に存在する相転移の

問題から、単結晶では高品質な結晶の作製は不可能であった。近年、企業と共同で開発したセラミック技術によって、初めて透光性に優れた高品質な  $\text{Y}_2\text{O}_3$  を得ることができるようになり<sup>1),2)</sup>、2003 年に  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  セラミックを用いた LD 励起モード同期レーザーを実証した<sup>3),4)</sup>。これは世界で初めてのセラミック利得媒質を用いたモード同期発振であった。その後他の希土類三산화物についても研究を進め、2006 年には  $\text{Yb}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$  セラミックのモード同期発振を初めて実現し、パルス幅 357fs、平均出力 352mW を得た<sup>5)</sup>。 $\text{Lu}_2\text{O}_3$  は Yb 添加による熱伝導率の低下が小さい

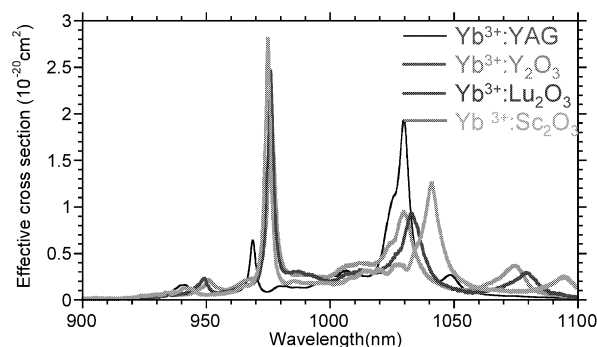


図 1. Yb 添加希土類酸化物と Yb:YAG の誘導放出断面積スペクトル

表 1. Yb 添加希土類酸化物( $\text{Yb}:\text{Re}_2\text{O}_3, \text{Re}=\text{Y}, \text{Lu}, \text{Sc}$ )と Yb:YAG の比較

媒質	Yb:YAG	$\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$	$\text{Yb}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$	$\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$	$\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ + $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$
融点( $^{\circ}\text{C}$ )	1930	2430	2450	2430	
熱伝導率 (W/mK)	9.9 ± 0.3	13.6	10.9 ± 0.6	12.5 ± 0.6	
蛍光幅 (nm)	8.5	15	13.5	11.5	>25
フーリエ限界 パルス幅 (nm)	139	74	86	99	<50
$n@532\text{nm}$	1.83	1.92	1.93	2.01	
$n_2(10^{-13}\text{ESU})$	2.49 ± 0.70	5.79 ± 1.45	3.96 ± 1.77	5.32 ± 1.33	

ことから希土類三二酸化物の中でも特に高出力超短パルスレーザーに適していると注目されている。また  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  セラミックレーザーについても最適化を進め、188fs、平均出力 220mW を得た<sup>6)</sup>。これは当時の超短パルスセラミックレーザー、及び単結晶を含む Yb 添加希土類三二酸化物レーザーにおける最短パルス発生であり、我々のセラミックスの超短パルスレーザー媒質としての有用性を証明する結果となった。以上が本助成研究を開始する以前の状況であった。

しかしこれらのモード同期法には半導体可飽和吸収体鏡 (SESAM) を用いており、損失変調度が飽和しやすいため利得帯域を越える短パルス化、高出力化は極めて困難であった。本研究では、SESAM 法の代わりに、希土類三二酸化物の有する大きな非線形屈折率 (表 1) を利用し、LD 直接励起では困難なカーレンズモード同期法を探索した。その深い高速変調により利得帯域制限を超える短パルス化、高出力化を実現し、チタンサファイアレーザーに代わる高出力・高効率・短パルス光源を提示することを目的とした。

## 2. LD 励起カーレンズモード同期フェムト秒レーザー

カーレンズモード同期はチタンサファイアレーザーでは一般的な方法であるが、LD 励起 Yb 添加固体レーザーでは困難であった。チタンサファイアレーザーはシングルモード光で励起されるが、LD 励起の場合マルチモードのため共振器モードに比べ利得媒質中の励起部分が大きく、カーレンズ効果に伴う共振器モード変化による利得変調 (ソフトアパーチャー) 効果を与えることが困難なためである。しかし希土類三二酸化物は石英ガラスの約 5 倍、YAG の約 2 倍という大きな非線形屈折率を有し大きなカーレンズ効果が得られるため、LD 励起でもカーレンズモード同期が可能であると期待された。

我々は利得媒質として新材料の  $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  セラミックを用いて、LD 直接励起カーレンズモード同期発振に成功した<sup>7)</sup>。実験配置図を図 1 に示す。 $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  セラミックを Brewster 配置した非点収差補正 Z 型共振器を構成し、LD をビーム整形したのち片側端面励起した。出力鏡側のプリズム対で分散補償を行った。当初終端鏡 M4 には SESAM を用いて SESAM モード同期共振器とした。凹面鏡位置 (M1, M3) を調整し、モード同期時のパルス幅が短くなるように注意深くアライメントした。この結果 CW 時のビーム品質は劣化し ( $M^2 \sim 2$ )、鉛直方向が不安定共振器に

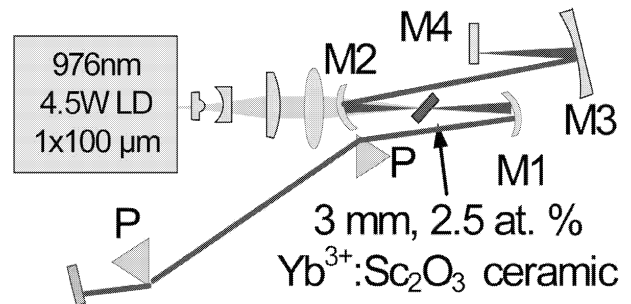


図 2. LD 励起カーレンズモード同期  $\text{Yb}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  レーザー

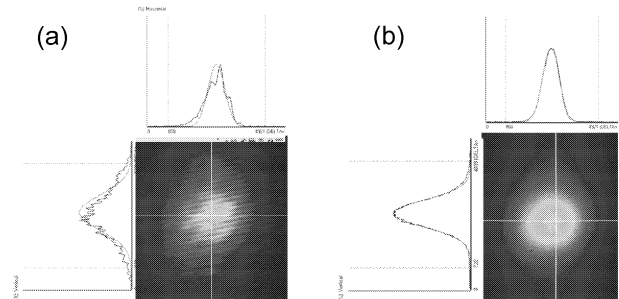


図 3. (a) CW 発進時 (b) モード同期時のビーム形状

近い状態となり、モード同期時に安定共振器となって  $M^2 < 1.2$  の高いビーム品質が得られるようになった (図 3)。この状態で SESAM を全反射鏡に代えても動作は変わらず、モード同期がカーレンズモード同期であることを確認した。これは詳細な検討の結果、利得セラミック中において共振器モード径  $40 \times 65 \mu\text{m}^2$  (鉛直  $\times$  水平、カーレンズ効果のない時) に対し LD のビーム径が  $20 \times 180 \mu\text{m}^2$  と著しく扁平で、水平方向については大きなモード不整合のため利得変調効果はほとんどないが、鉛直方向 (LD fast 軸方向) についてはカーレンズ時に共振器モードが縮小してモード整合が向上し、その方向だけで十分大きな利得変調を与えることができるためと分かった。

パルス列を図 4 に示す。3 時間以上にわたる安定なモード同期が得られた。最大出力時の自己相関波形を図 5 に示す。SESAM の有無に関わらず  $\text{Sech}^2$  フィットでパルス幅 92fs が得られた。スペクトルは強い自己位相変調効果により材料の利得幅よりも広がっており (図 6)、カーレンズモード同期の深い利得変調によりダブルパルス化や CW 発振を抑制して、SESAM モード同期よりも狭いソリトンパルス幅を実現できた。時間バンド幅積は 0.34 とほぼフーリエ限界である。最大出力は 850mW、繰り返し周波数 83MHz、ピークパワー 111kW、光-光変換効率 21.9% を実現した。これは発表当時、セラミックに限らず全ての Yb 添加系結晶におけるサブ 100fs 超短パルスレーザー光源に

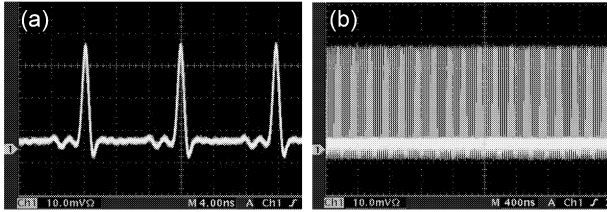


図 4. オシロスコープ上のパルス列。(a) 4ns/div (b) 400ns/div

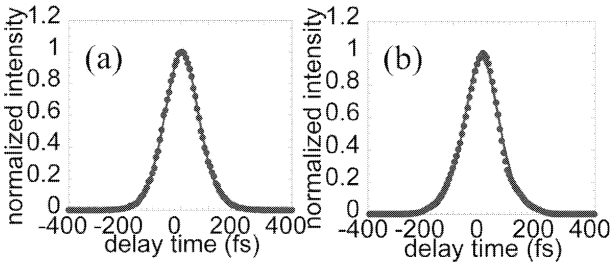


図 5. 自己相関波形。(a) SESAM 有り (b) SESAM 無し

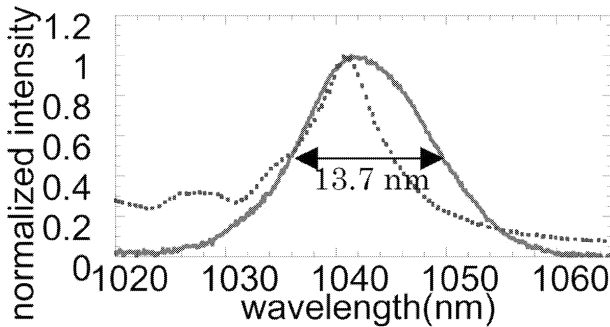


図 6. モード同期時のスペクトル(実線)。点線は蛍光スペクトル。

において出力、効率ともに最高の結果であった。また高出力 LD 励起 Yb 添加固体レーザーのカーレンズモード同期は、2001 年の Yb:KYW によるパルス幅 71fs、出力 120mW、光-光変換効率 3.8%の報告のみであり<sup>8)</sup>、我々の成功は世界で 2 番目であり、さらに出力で 7 倍、光-光変換効率では 5 倍以上を実現した。KYW に比べて希土類三산화物は 4 倍以上高い熱伝導率を有している事から一層の高出力化が見込める。

### 3. 複合媒質によるモード同期レーザー

#### 3.1 非線形性増強

カーレンズモード同期のためには利得媒質に十分大きな非線形性が必要である。このために図 7 に示すような複数の希土類三산화物セラミックを同一共振器内で同時に用いた複合セラミックレーザーについて研究した。まず 3at.%Yb<sup>3+</sup>:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と無添加 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を物理的に接着して、複合媒質として用いた。屈折率はほとんど同じでありフレネル

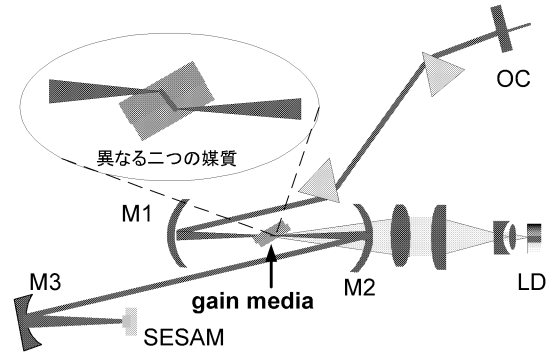


図 7. LD 励起カーレンズモード同期複合媒質レーザー。SESAM はモード同期安定化のために用いる。

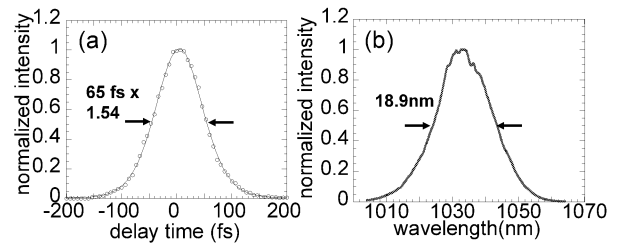


図 8. カーレンズモード同期 Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/無添加 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 複合セラミックレーザーの(a)自己相関波形と(b)スペクトル。

反射は無視できる。Yb<sup>3+</sup>:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は 1mm 厚しかなく非線形長が不十分なため、2mm 厚の無添加 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を加えることで非線形効果を増強してカーレンズモード同期を実現し、パルス幅 65fs、出力 320mW を得た (図 8)<sup>9)</sup>。励起光源として高出力の LD を用いた Yb 添加固体レーザーによる直接発生では最短のパルス発生であった。スペクトル幅は 18.9nm にも達し、深い利得変調が得られていることが分かる。

#### 3.2 利得帯域幅増強

前述の実験において、異なる媒質を同一共振器内で同時に使用しても超短パルス発振が可能であることを確認できた事から、更なる短パルスを得るために、異なる二つの Yb 添加材料を同時に用い、非線形効果と利得帯域幅の双方の制御増強を行った複合利得媒質セラミックレーザーについて取り組んだ。図 9 に示すように、蛍光スペクトルの異なる結晶を同時に用いる事によって、単一で用いた場合よりもより広帯域な利得が得られる。光学特性のまったく異なるレーザー結晶を同時に用いる場合には、レーザー発振の競合が起こり安定な超短パルス発振は得がたいが、Yb 添加希土類三산화物同士では比較的蛍光のピークが近く、蛍光断面積の値も近い為に安定な発振が可能となる。

Yb<sup>3+</sup>:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Yb<sup>3+</sup>:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いてこの複合利得媒質による広帯域利得モード同期レーザーを実証した<sup>10)</sup>。各々

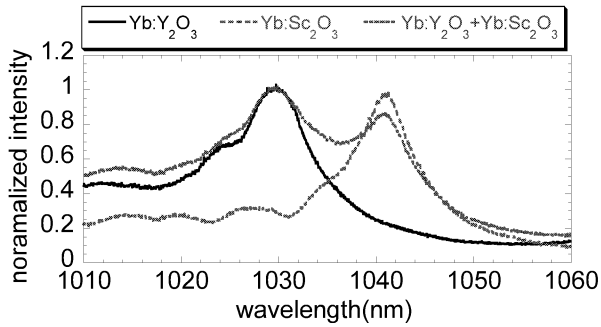


図 9.  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  と  $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  単体, 及び同時に用いた時の蛍光スペクトル

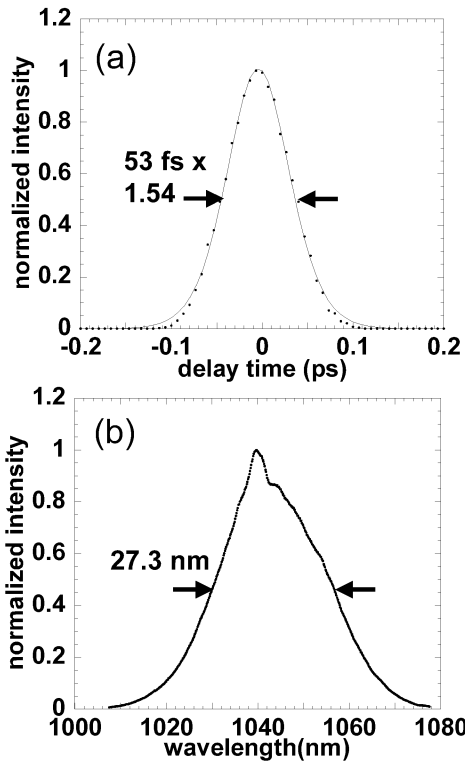


図 10.  $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3/\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  複合利得媒質カーレンズモード同期セラミックレーザー出力の(a)自己相関波形と(b)スペクトル。

1mm, 2.5at%および 1mm, 1.8at%の試料を物理的に接触し、励起割合を調整することで利得スペクトルを人為制御した。パルス幅 53fs, 出力 1W, 及びパルス幅 66fs, 出力 1.5W を得た (図 10)。スペクトル幅は 27nm にも達した。これは現在までに報告されている全ての Yb 添加系結晶におけるサブ 100fs 超短パルスレーザー光源においての最大出力であり、また  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$  レーザー励起を含め、Yb 添加固体レーザーの共振器からの直接発生における世界最短パルスの発生である。さらに効率においても他の報告を大きく凌駕している。

本実験では異なる材料を物理的に接触させて用いたが、コンポジットセラミック技術を用いることで更なる高品質な複合媒質が実現できる。また逆に分離して配置し、 $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  と  $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  をそれぞれ励起することで、励起パワースケーリング, 励起割合制御が可能になると期待される。

#### 4. セラミックスと単結晶の比較

これまで報告したように、我々のカーレンズモード同期セラミックレーザーの性能が従来モード同期 Yb 系レーザーに比べ非常に優れていたため、セラミックであることによって短パルス化になにかしらの影響を与えているのではないかという疑問が寄せられていた。これを確認するために、単結晶の希土類三산화物を用いたモード同期実験も行った。ドイツ・ハンブルグ大学 Huber 研と協力関係を築き、単結晶の Yb 添加希土類三산화物  $\text{Yb}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  を入手し、 $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  セラミックと共に同一の共振器で実験を行った結果、単結晶, セラミックすべてにおいて出力 500mW 以上で 70fs 以下の超短パルス発生に成功した(表 2)<sup>11)</sup>。これにより短パルス発生においては単結晶とセラミックに大きな差は存在しない事がわかったが、今後のより一層の高出力化を進めていく上ではセラミ

表 2. 単結晶とセラミックでの超短パルスレーザー発振結果。比較のため同一共振器を用いた。

Material	$\Delta t$ (fs)	P (mW)	Thick-ness (mm)	Yb (at. %)	Pump source
$\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ single crystal	64	640	2.4	2.5	Fiber coupled LD
$\text{Yb}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ single crystal	68	540	1.9	3.0	Fiber coupled LD
$\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ ceramic	68	540	3	2.0	Fiber coupled LD
Yb:YAG ceramic	128	1300	3	7	Broad-stripe LD

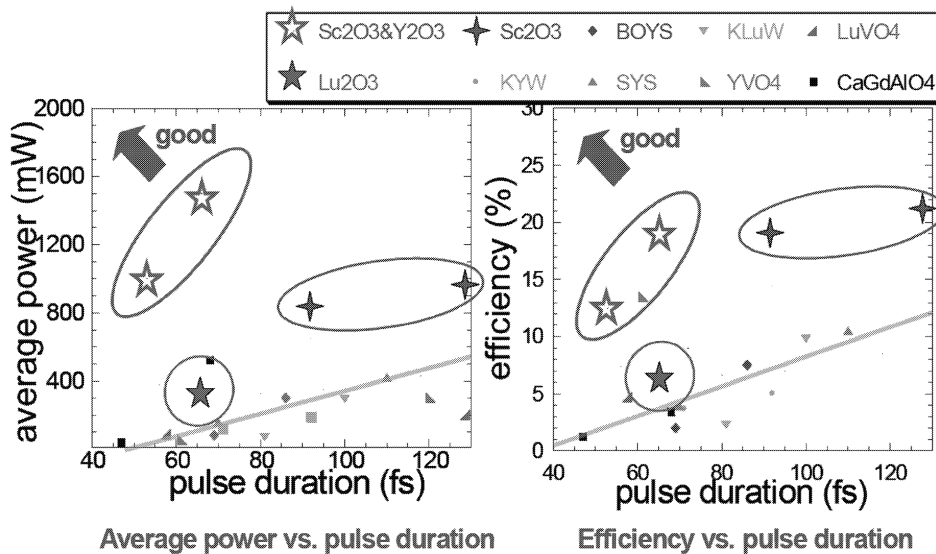


図 11. これまで報告されている様々なモード同期 Yb 添加固体レーザーの平均出力(左)および光-光変換効率(右)をパルス幅に対してプロットしたもの。左上に行くほど望ましく、円で囲まれたデータが我々の結果を示す。

ック材料のサイズ拡大則と高い熱破壊閾値が有利に働くと考えられる。

## 5. まとめ

本研究において、LD 励起 Yb 系固体レーザーにおけるカーレンズモード同期の方法を確立した。非線形屈折率の大きな希土類三산화物をホスト材料に用いることで深い利得変調を実現し、利得媒質の一般的な帯域幅制限を越えたサブ 100fs モード同期発振が可能となった。また媒質の複合化による非線形性の増強、利得帯域幅の拡大のアイデアを提示し、モード同期レーザーの制御・高性能化が可能であることを実証した。

図 11 に我々が達成した結果を 2 次元プロットで示す。このように 100fs 以下の短パルス領域でパワー、効率共に他材料を凌駕し、Yb 添加固体レーザーの性能を一躍向上させることとなった。チタンサファイアレーザーと同等のパワーを実現し、光-光変換効率で 20%以上（電気-光変換効率で 10%以上）が可能となった。後者は励起 LD のモード不整合の改善により 2 倍以上の向上が見込める。超微細加工等の応用分野に必要な、実用フェムト秒光源の基盤技術を確認したものと考える。

## 謝辞

本研究をご支援いただいた（財）天田金属加工機械技術振興財団に感謝申し上げます。また本研究の遂行を支えてくれた電気通信大学大学院生の戸倉川正樹君、黒川裕章君、

共同研究者の電気通信大学の植田憲一教授、神島化学（株）の八木秀喜氏、柳谷高公氏、ロシア科学アカデミーの A. Kaminskii 教授に感謝します。

## 参考文献

- 1) J. Lu, K. Takaichi, T. Uematsu, A. Shirakawa, M. Musha, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, and A. Kaminskii, "Yb<sup>3+</sup>:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramics - a novel solid-state laser materials," *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, L1373-L1375 (2002).
- 2) K. Takaichi, J. Lu, J-F Bisson, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, and A. Kaminskii, "Highly efficient Yb-doped Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic lasers at 1030nm and 1075nm," *Appl Phys. Lett.* **84**, 317-319 (2004).
- 3) A. Shirakawa, K. Takaichi, H. Yagi, J. -F. Bisson, J. Lu, M. Musha, K. Ueda, T. Yanagitani, T. S. Petrov, and A. A. Kaminskii, "Diode-pumped mode-locked Yb<sup>3+</sup>:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic laser," *Opt. Express* **11**, 2911-2916 (2003).
- 4) A. Shirakawa, K. Takaichi, H. Yagi, M. Tanisho, J. -F. Bisson, J. Lu, K. Ueda, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii, "First mode-locked ceramic laser: Femtosecond Yb<sup>3+</sup>:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic laser," *Laser Physics* **14**, 1375-1381 (2004).
- 5) M. Tokurakawa, K. Takaichi, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, S. Hosokawa, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii, "Diode-pumped mode-locked Yb<sup>3+</sup>:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic laser," *Opt. Express* **14**, 12832-12838 (2006).
- 6) M. Tokurakawa, K. Takaichi, A. Shirakawa, K. Ueda, H.

- Yagi, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii, "Diode-pumped 188 fs mode-locked  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  ceramic laser," *Appl. Phys. Lett.* **90**, 071101 (2007).
- 7) M. Tokurakawa, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii, "Diode-pumped sub-100 fs Kerr-lens mode-locked  $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  ceramic laser," *Opt. Lett.* **32**, 3382-3384 (2007).
- 8) H. Liu, J. Nees, and G. Mourou, "Diode-pumped Kerr-lens mode-locked  $\text{Yb:KY}(\text{WO}_4)_2$  laser," *Opt. Lett.* **26**, 1723-1725 (2001).
- 9) M. Tokurakawa, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, S. Hosokawa, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii, "Diode-pumped 65 fs Kerr-lens mode-locked  $\text{Yb}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$  and nondoped  $\text{Y}_2\text{O}_3$  combined ceramic laser," *Opt. Lett.* **33**, 1380-1382 (2008).
- 10) M. Tokurakawa, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii, "Diode-pumped ultrashort-pulse generation based on  $\text{Yb}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  and  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  ceramic multi-gain-media oscillator," *Opt. Express* **17**, 3353-3361 (2009).
- 11) M. Tokurakawa, A. Shirakawa, K. Ueda, R. Peters, S. T. Frederich-Thornton, K. Petermann, G. Huber, H. Yagi, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii, "Ultra-Short Pulses from Diode - Pumped  $\text{Yb}^{3+}$ -Doped Crystal and Ceramic Lasers with High Average Power," *Advanced Solid-State Photonics 2009*, paper MC3, Denver, Feb. 2, 2009.