

フッ化物光ファイバを用いた中赤外フェムト秒レーザーの開発

京都大学 化学研究所

助教 時田茂樹

(平成 20 年度一般研究開発助成 AF-2008210)

キーワード：超短パルスレーザー，ファイバレーザー，レーザー微細加工

1. 研究の目的と背景

100 fs 前後のパルス時間幅をもつ超短パルスレーザーが広く用いられるようになり、その超高速性、高強度性、広帯域性を利用した様々な応用が行なわれている。超精密加工、超高速時間分解計測、分子制御、光コヒーレンストモグラフィなど、ナノテクノロジー、バイオテクノロジー、医療、産業分野に渡り幅広い応用例がある。これらの応用に必要なマイクロジュール以上のパルスエネルギーを実用的な効率と装置規模で得られる超短パルスレーザーとしては、0.8 μm 帯の Ti レーザ、1 μm 帯の Yb レーザ、1.5 μm 帯の Er レーザ、2 μm 帯の Ho レーザと Tm レーザが挙げられ、これらの波長の 2~4 倍高調波もしばしば用いられる。したがって 0.2~2 μm の波長域では、離散的ではあるが多用途へ応用可能な実用的光源が揃っている (図 1)。

一方、2 μm を超える波長域においては、現状では、極めて大型の自由電子レーザー、又は、効率が著しく低く高出力化が困難な波長変換レーザーのみであり、実用的な光源が存在しない。しかし、中赤外コヒーレント光に対するニーズは医療、環境計測の分野で特に大きく、その高い有用性が既に広く認識されている。また産業分野においても、OH 基への高い吸収性を利用した潜在的応用が多数存在する。中赤外域の実用的光源の不在は、このような広範にわたる潜在的応用技術の発展の障壁となっている。

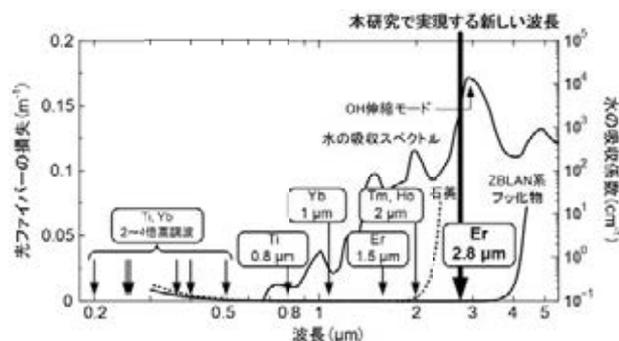


図 1 超短パルスレーザーの波長と光ファイバ損失特性

筆者らは、中赤外域の超短パルス・高平均出力・高効率・全固体レーザーの具体化に着手するべく、中赤外 2.8 μm 帯でレーザー利得が得られる Er 添加フッ化物ガラスファイバに着目し、同波長帯の高ピーク出力レーザーパルス発生に関する基礎研究を行った。本論文では、筆者らが開発した波長可変ファイバレーザー、モード同期ファイバレーザー、高出

力連続波ファイバレーザーについて述べる。

2. Er 添加フッ化物ファイバレーザーの特徴

フッ化物ガラスファイバはフォノンエネルギーが小さく、およそ 4 μm までの透過帯域を持つため、中赤外レーザーや可視から近赤外域の高発光効率レーザーの増幅媒質として有用である。およそ 2 μm 以上の波長で実用的な透過率を持たない一般的な石英ガラスファイバと比べ、フッ化物ファイバは著しく広い透過帯域を持つ。一方でフッ化物ガラスは、潮解性、低融点、低機械強度といった特性を持ち、光学特性以外の面で石英ファイバ等の酸化ガラスファイバに大きく劣る。しかし、これらの欠点は被覆や放熱の技術により補うことが可能であろう。

フッ化物ガラスには ZrF₄ 系、AlF₃ 系、InF₃ 系などいくつかの種類があるが、一般的にはこれらのフッ化物を主成分とし、副成分としてアルカリ土類金属のフッ化物を添加して合成される。それらの中で光ファイバとして標準的なものは、ZBLAN (ZrF₄-BaF₂-LaF₃-AlF₃-NaF) と呼ばれる ZrF₄ 系のガラス材料である。石英ガラスの最大フォノンエネルギーがおよそ 1000 cm^{-1} であるのに対し、ZBLAN ガラスではおよそ 500 cm^{-1} と 1/2 になる。このため、Er などの希土類を添加した際、石英では多フォノン緩和により非輻射損失となる多くの遷移が、ZBLAN では発光 (又は誘導放出) を示すようになる。

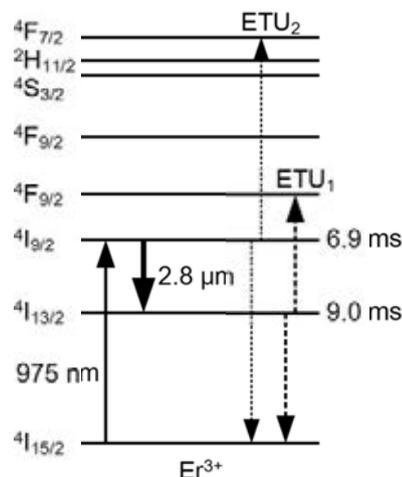


図 2 Er:ZBLAN ガラスのエネルギー準位図

ZBLAN ガラスに添加された Er³⁺イオンの遷移図を図 2 に示す。4I_{9/2} の蛍光寿命は 6.9 ms と長いので、975 nm の

励起光により ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ 間に容易に反転分布を得ることができ、 $2.8 \mu\text{m}$ のレーザ発振が得られる。励起波長が 975 nm であるため、高出力 Yb ファイバレーザ励起用として高性能・低価格化が進んでいる半導体レーザをそのまま用いることができる。しかし、 ${}^4I_{13/2}$ は上準位 (${}^4I_{9/2}$) より長い 9.0 ms の蛍光寿命を有するため、 ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ 間の励起状態吸収が生じ、レーザ効率を低下させる要因となる。これを回避するため、Er を高濃度添加することにより Er-Er 間のエネルギー移動アップコンバージョン (ETU) を促進し、 ${}^4I_{13/2}$ の占有率を下げる方法が用いられる。ErF₃ の添加量をおよそ $2 \sim 10 \text{ mol\%}$ とすることにより、最も高い効率が得られることが示されている[1]。図 3 に ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ の蛍光スペクトルおよび ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ の吸収スペクトルを示す。蛍光・吸収スペクトルともにおよそ 2600 nm から 2950 nm にわたって広がっており、波長可変レーザや超短パルスレーザに適した特性を有している。放出断面積は最大で約 $5 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ と Yb 添加石英ファイバと同等の値であるが、上寿命が長いこと高い利得が得られる。

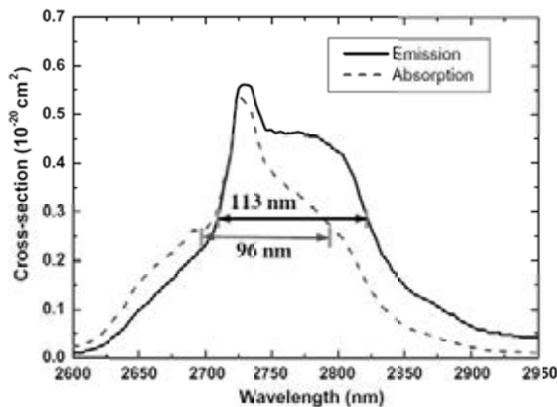


図 3 Er:ZBLAN ガラスの蛍光・吸収スペクトル (参考文献[2]より引用)

3. 低分散フッ化物ファイバの開発

超短パルス光がパルス波形を大きく崩さずにファイバ導波路中を伝播するには、導波路の群遅延分散が十分に小さい必要がある。このため超短パルスファイバレーザでは、システムを構成する光ファイバの群遅延分散の制御が不可欠である。ファイバ導波路内の群遅延分散補償技術を確立するため、ファイバの設計・試作を行った。フッ化物ガラスは石英と比べて屈折率分散が小さいという特徴を持ったため、ファイバのコア径およびコア/クラッドの屈折率比により変化する導波路分散により材料分散を打ち消すことが計算により示唆される。理論計算に基づき $2.7 \mu\text{m}$ 付近の群遅延分散 10 ps/km/nm 以下となるよう、導波路の設計を行った。図 4 に設計した Er:ZBLAN ファイバの群遅延分散の計算値を示す。コア径は $6.9 \mu\text{m}$ 、コア NA は 0.20 、Er 濃度は 4 mol\% である。波長 $2 \sim 2.8 \mu\text{m}$ の広い範囲において 10 ps/km/nm 以下の低分散特性が得られる。

設計したファイバは実際に試作を行ったが、測定器が未開発であるため実際の群遅延分散の測定は行えておらず、今後の課題である。中赤外波長域のファイバ導波路分散の測定技術は確立していないため開発を要する。

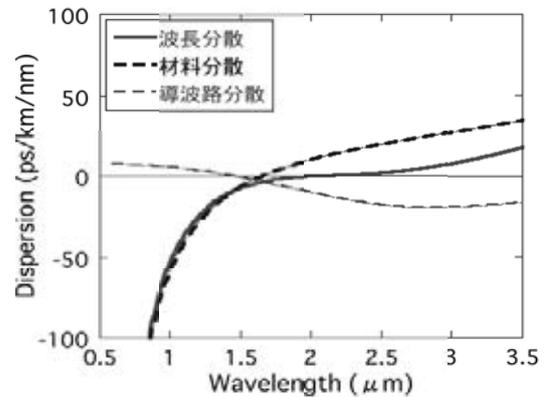


図 4 Er:ZBLAN ファイバの分散特性

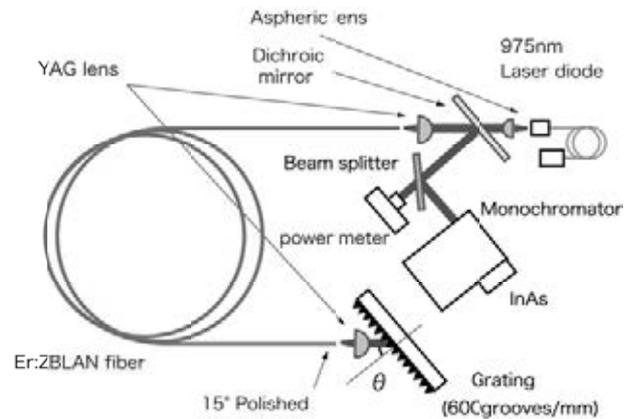


図 5 波長可変ファイバレーザ

4. 広帯域波長可変ファイバレーザの開発

ファイバの波長同調特性は超短パルス発生・増幅を調べるうえで重要な基礎特性である。また、 $2.8 \mu\text{m}$ 帯の波長可変レーザは環境計測等に有用である。図 5 に示すような波長可変ファイバレーザを開発し、Er:ZBLAN ファイバの利得特性を調べた。ファイバは、コア径 $6.9 \mu\text{m}$ 、コア開口数 $\text{NA} = 0.20$ 、Er 濃度 4 mol\% 、長さ約 6 m である。樹脂製の第二クラッドによるダブルクラッド構造となっており、第一クラッド径は $123 \mu\text{m}$ である。励起光源として波長 975 nm のファイバ結合型半導体レーザを用い、レンズを用いて第一クラッドへ励起光を入射した。励起光出力は最大で 5.4 W である。ファイバの片方の端面と回折格子との間でリトロー型共振器を構成し、回折格子を用いて発振波長を変化させた。波長同調特性を図 6 に示す。励起入力が増加とともに発振波長域は長波長側へシフトした。注目すべきは、励起入力 4 W 以上の場合に $2.86 \mu\text{m}$ の長波長の発振が得られたことである。この結果はこれまでに他のグループで得られた最大波長 $2.82 \mu\text{m}$ よりも大幅に広く [3-7]、全

体の波長同調域は 150 nm まで拡大した。これは Er:ZBLAN ファイバレーザの高いポテンシャルを新たに示す成果である。

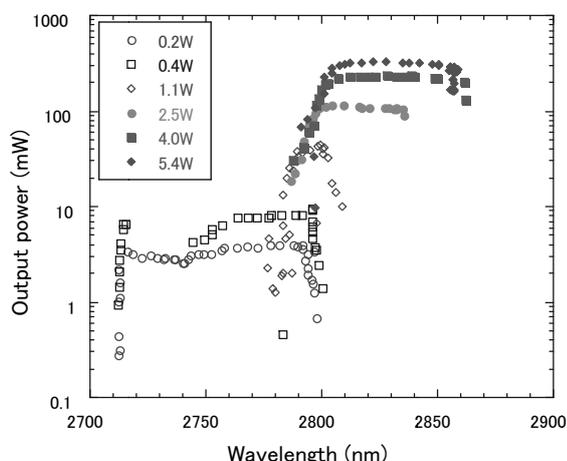


図6 波長同調特性

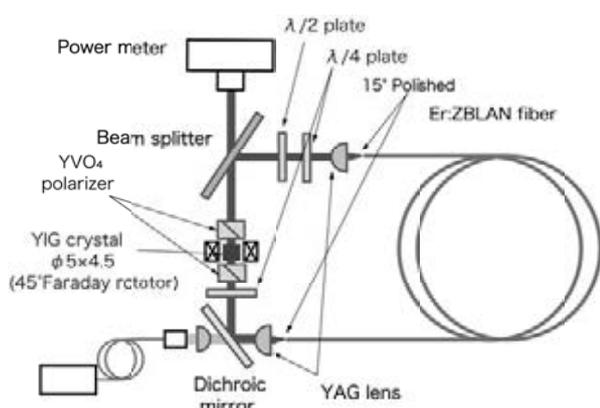


図7 モード同期リングファイバレーザ

5. モード同期ファイバレーザの開発

試作した低分散ファイバを用いてリング型モード同期発振器の開発を試みた。図7に装置の概略図を示す。モード同期方法は、レーザ波長やファイバ材料に関係なく適用できる非線形偏波回転法を採用した。リング型共振器の発振方向を右回りのみとするため YIG 結晶と永久磁石を用いた 45°ファラデー回転子を開発し、共振器内で用いた。また、共振器内の偏光を制御するため3枚の波長板を用いた。ファイバは、コア径 6.9 μm 、コア開口数 $\text{NA} = 0.20$ 、Er 濃度 4 mol%、長さ約 30 m である。励起光源として波長 975nm のファイバ結合型半導体レーザを用い、レンズを用いて第一クラッドへ励起光を入射した。励起入力 3.2 W のとき 43 mW の CW 出力が得られた。励起パワーと偏光状態を最適化することにより、モード同期発振によるパルス列の観測に成功した。図8にパルス列の波形を示す。繰り返し周波数は約 6.7 MHz であり、光速を共振器長で割った値とおよそ一致する。したがって、単一のパルスが共振器内を周回するモード同期の状態であることがわかる。

2 μm 帯よりも長波長の連続発振モード同期ファイバレーザの報告はなく、本実験により 2.8 μm 帯のモード同期発振に初めて成功した。しかしながら、モード同期は不安定であり、実用化には改良が必要である。



図8 モード同期パルス列波形

6. 高出力化技術の開発

前述のモード同期レーザの平均パワーは 10 mW 程度であり、パルス当たりの熱量は 1 nJ 程度と小さいため応用範囲が狭い。広く利用できる光源とするには増幅が不可欠である。低出力の超短パルスを、ファイバレーザ増幅器により高平均出力・高ピーク出力パルスへと増幅するための基礎技術を確認するため Er:ZBLAN ファイバの高出力連続レーザ発振に関する技術開発を行った。

Er:ZBLAN ガラスは石英ガラスと比べ融点が低く、レーザ発振の際には励起光の数十パーセントが非輻射損失により熱となる。Yb 添加石英ファイバレーザの非輻射損失が 10%以下であることと比較すると数倍の発熱量ある。このため、Er:ZBLAN ファイバレーザは石英ファイバレーザと比べて高出力化が難しい。実際、2007 年の段階でシングルモード Yb ファイバレーザ（波長約 1.1 μm ）の最大出力は数キロワットに達しているが、Er:ZBLAN ファイバレーザの出力は 10 W に満たない[8,9]。このことはフッ化物ファイバレーザがまだ発展途上であることにも起因しており、放熱技術の開発により高出力化が期待できる。

我々はフッ素系液体を利用した流体冷却によるフッ化物ファイバの高効率放熱技術を開発し、24 W の CW レーザ出力を実現した。この出力は 2007 年に米国の X. Zhu ら[8]が報告した 9W よりも大幅に大きく、報告されている出力不安定性（時間的揺らぎ）の問題も解決した。以下に概要を示す。

装置の概略図を図9に示す。Er ドープ濃度 6 mol%、コア径 25 μm 、第一クラッド径 350 μm (D シェイプ) のダブルクラッド ZBLAN ファイバを2台のファイバ結合型半導体レーザ（975 nm）を用いて両端面より励起した。フッ素系液体を循環させた容器内にファイバ全体を浸し、ファイバ両端部に配置した CaF_2 窓を通して励起光の入力および放出光の入出力を行った。図10に、励起入力に対するレーザ出力の関係を示す。総励起入力 166 W のとき

24 W の出力が 14.5% の光-光変換効率で得られた。5 分間の出力変化を図 11 に示す。顕著な変動は見られず、安定した出力が得られた。

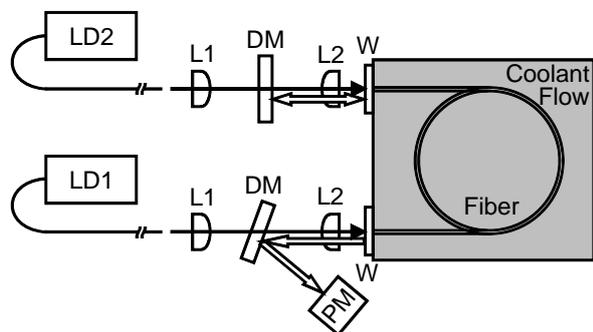


図 9 高出力連続波ファイバレーザ

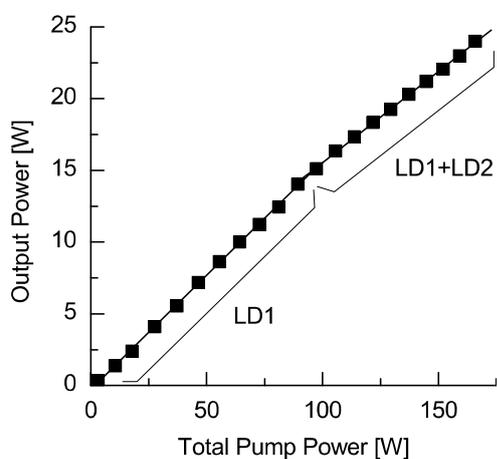


図 10 入出力特性

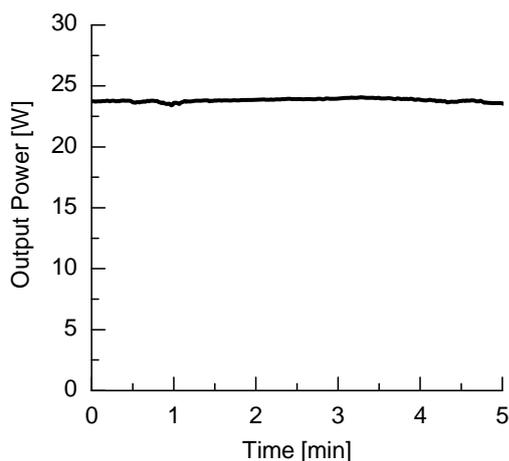


図 11 出力の時間変化

7. まとめ

中赤外域の超短パルス・高平均出力・高効率・全固体レーザの実現を目指し、中赤外 2.8 μm 帯でレーザ利得が得られる Er 添加フッ化物ファイバに着目し、同波長帯の高

ピーク出力レーザパルス発生に関する基礎研究を行った。波長帯域が 150 nm に及ぶ広帯域波長可変ファイバレーザを開発し、超短パルス発生へ向けた重要な基礎データを得た。また、リング型ファイバ共振器によるモード同期の観測に成功し、中赤外ファイバレーザによる超短パルス発生の可能性を示した。さらに、世界最高出力の 2.8 μm 帯連続波ファイバレーザの開発に成功し、これまで飛躍的な高出力化が困難と考えられてきたフッ化物ガラスファイバレーザが高平均出力レーザとして高い能力を持つことを実証した。

謝辞

本研究をご支援いただいた公益財団法人天田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京都大学大学院生の廣兼麻友君、共同研究者である京都大学の阪部周二教授、橋田昌樹准教授に感謝いたします。

参考文献

- [1] B. Srinivasan, E. Poppe, J. Tafoya and R. K. Jain, *Electron. Lett.* **35**, 1338 (1999).
- [2] B. Wang, L. H. Cheng, H. Y. Zhong, J. S. Sun, Y. Tian, X. Q. Zhang, and B. J. Chen, *Optical Materials* **31**, 1658 (2009).
- [3] LL. Wetenkamp, Ch. Frerichs, G. F. West, and H. Többen, *J. Non-Cryst. Solids* **140**, 19 (1992).
- [4] N. J. C. Libatique, J. Tafoya, N. K. Viswanathan, R. K. Jain, and A. Cable, *Electron. Lett.* **36**, 791 (2000).
- [5] X. Zhu and R. Jain, *Opt. Lett.* **32**, 2381 (2007).
- [6] X. Zhu and R. Jain, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **20**, 156 (2008).
- [7] X. Zhu and R. Jain, *Opt. Lett.* **33**, 1578 (2008).
- [8] X. Zhu and R. Jain, *Opt. Lett.* **32**, 26 (2007).
- [9] X. Zhu and N. Peyghambarian, *Advances in Opto-Electronics* **2010**, 1–24 (2010).
- [10] S. Tokita, M. Murakami, S. Shimizu, M. Hashida, and S. Sakabe, *Opt. Lett.* **34**, 3062–3064 (2009).
- [11] S. Tokita, M. Hirokane, M. Murakami, S. Shimizu, M. Hashida, and S. Sakabe, *Opt. Lett.* **35**, 3943–3945 (2010).
- [12] S. Tokita, M. Murakami, S. Shimizu, M. Hashida, and S. Sakabe, *Opt. Lett.* **36**, in press (2011).