

高出力2 um超短パルスレーザー光源の開発

野村 雄高*

Y. Nomura

1. 研究の目的と背景

近年、新たな波長域における加工用の光源として、ツリ ウム添加ファイバーレーザーが注目されている。ツリウム 添加ファイバーレーザーは、波長 2 µm 近傍で発振する高 出力光源として有力であるが、この光は従来の加工用光源 の光よりも波長が長く、加工材料に対する光の透過率など の性質が変わってくるため、従来の光では難しかったり不 可能だったりした加工が可能になると期待される。たとえ ば、半導体材料のシリコンやゲルマニウムなどは可視・近 赤外領域の光は透過しないが 2 μm 近傍の光は透過するた め、これらの材質の裏側に別の物質を直接溶融接合させた り、材質内部に構造を直接書き込んだりすることができる と考えられる。また逆に、従来の光に対しては透明度が高 すぎてあまり吸収されず加工が難しかったプラスチック 材料や有機物質などについて、比較的よく吸収されるため に従来よりも効率よく加工できると期待される。このよう に、新たな波長の光を高出力で発生できるツリウム添加フ ァイバーレーザーは、加工の可能性を広げる光源として非 常に有力である。

ツリウム添加ファイバーレーザーのもう一つの重要な特徴は、その広い蛍光スペクトルである。この蛍光スペクトルは波長にして数百 nm に渡って広がっているため、時間幅が 1 ピコ秒を切るようなフェムト秒超短パルス光を発生させることが可能である。このような超短パルス光を加工に用いた場合、熱が材料内を拡散する時間がないため余計な材料の融解が生じず、また非線形光学過程を利用することにより物質と相互作用する領域、すなわち加工する領域を精密に制御することができるため、より高品質な加工が可能となると期待される。

これを踏まえて我々のグループでは、ツリウム添加ファイバーレーザーによる超短パルス光源の開発を進めてきた。これまでの研究では、ツリウム添加 ZBLAN ファイバーとよばれるフッ化物ファイバーを用いてレーザー発振器を開発し、時間幅が50フェムト秒を切るような超短パルスの発生に成功している。その一方で、出力パワーは36 mW、パルスエネルギーにして0.5 nJ 程度に限定されており、加工用途に用いるにはさらなる高出力化が必要となる。本報告では、この発振器からの出力パルスを増幅するためのシステムの開発について報告する。

2. 実験方法

2.1 チャープ・パルス増幅器の開発

これまでの研究で、時間幅 41 フェムト秒のパルス光を 平均出力 36 mW で発生させることのできるようなレーザ 一発振器を開発していた。この出力をさらに増幅するため の、チャープ・パルス増幅システムを開発した。すなわち、 ストレッチャー、増幅器、コンプレッサーの3つから構成 されるシステムを開発した。

このシステムを開発する際に、ZBLAN と呼ばれるフッ化物を材質としたファイバーを用いた。ZBLAN は ZrF4-BaF2-LaF3-AlF3-NaFという5種類のフッ化物を組み合わせた組成から成るフッ化物ガラスであり、特に中赤外領域において吸収が少ないことで知られているほか、物質分散も小さいため、超短パルスの発生にも有効である。また、ZBLAN は石英に比べてフォノンエネルギーが小さいため、

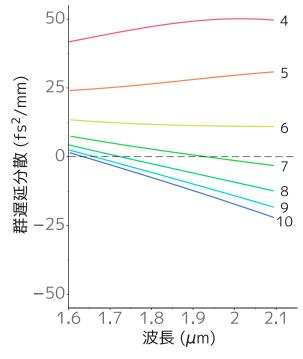


図 1 コア径を変えた際の ZBLAN ファイバーの総分散 の変化の様子。各グラフの脇の数字はコア径 (単位は μ m)。

^{*}自然科学研究機構 分子科学研究所 メゾスコピック計測研究センター 助教

励起準位の寿命が長くなり、結果としてレーザー媒質として用いた際の効率が向上することが期待できる。

ストレッチャーとしては、正分散を与えるための光学系 として回折格子と球面鏡を用いた系を用いるのが一般的 であるが、調整が難しく透過効率も低いため、代替手段と して正の分散を与える媒質を用いることを検討した。この 際、通常の石英ファイバーは波長 2 μm 近傍では総分散が 負となるため、今回の用途には使用できない。一方、 ZBLAN ファイバーであればもともとの物質分散の絶対値 が小さいため、図1に示すように、コア径を調整すること で総分散を正から負まで広い範囲で制御することが比較 的簡単に実現できる。図から、コア径が小さいほうが正の 分散が大きくなることがわかるが、コア径を小さくし過ぎ るとファイバーへの結合が難しくなり、結合効率が落ちる ことが予想されるため、コア径が 5 μm の ZBLAN ファイ バーを用いることにした。このファイバーを全部で 15 m 用意し、この中に発振器からの出力パルスを通すことによ り、パルス幅を 25 ps 程度まで伸長した。

その後、この光を増幅するため、コア径 32 µm、第一クラッド径 200 µm のツリウム添加ダブルクラッド ZBLANファイバーのコアに入射した。このファイバーのコアのNAは 0.08 と比較的小さめであるため、低次の横モードだけが効率よく伝搬でき、コア径が大きくても比較的ビームプロファイルが綺麗になると期待される。なお、入射時のビームの平均パワーは 12 mW であった。励起光源としては波長 793 nm のマルチモードファイバー出力の LD を用い、シードパルスの反対側の端面からファイバーのクラッドに入射結合させた。この際、熱によるファイバーの損傷が問題となったため、励起光側の端面に無添加ダブルクラッドファイバーを融着することで熱問題の緩和を試みた。

この後、増幅用ファイバーから出力されたパルスを、刻線 560 本/mm の透過型回折格子対を用いたコンプレッサーに通すことで圧縮した。このコンプレッサーの透過効率

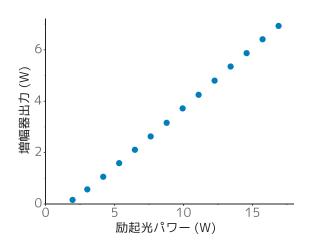


図2 励起用レーザーダイオードの出力に対する増幅 器の出力パワーの推移。

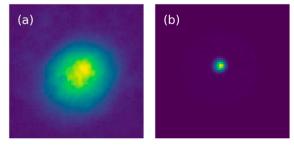


図 3 増幅器の出力ビームプロファイルを(a)集光前および(b)集光後に測定したもの。

は~66%であった。

励起用 LD の励起パワーに対する、増幅器の出力パワーを図 2 に示す。入射した励起光のパワーが 17 W の時、パルス圧縮前の出力として 6.9 W が得られた。

この際のビームプロファイルを図3に示す。図3(a)は集光前のビームであり、図3(b)は集光後のビームであるが、いずれも綺麗な円形であり、NAの低いファイバーを用いた効果が出ていることがわかる。

また、測定された出力スペクトルを図4に示す。シード光のスペクトルは1700-2100 nm の範囲で広がっていたのだが、それに比べてかなり狭くなってしまった。スペクトル幅が狭まった要因としては2つ考えられる。1つはゲインナロウイングが生じた可能性であり、もう1つはツリウムイオンの再吸収によって短波長領域が吸収されてしまったという可能性である。それでも、増幅後のスペクトルは幅100 nm 以上に渡って広がっており、超短パルス発生には十分であると考えられる。

このパルス幅が実際にどの程度になっているかを調べるため、増幅器の出力パルスについてコンプレッサーと呼ばれる光学系を通してパルス圧縮した後、周波数分解光ゲート法 (FROG 法) による測定を行った。このデータを解析することによって得られたパルス波形を図 5 に示す。このパルス幅は 150 フェムト秒となっており、増幅後の出力

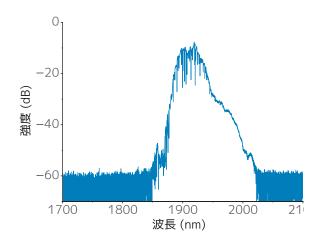


図4 増幅器の出力スペクトル。

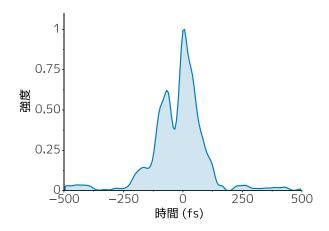


図5 FROG 測定によって得られた増幅後のパルス波形。

も超短パルスとなっていることがわかる。また、圧縮後の 平均パワーは 3.9 W となっているが、これはパルスエネル ギーにして 58 nJ に相当する。

2.2 ZBLAN ファイバーによる高効率増幅

ZBLANファイバーと石英ファイバーとで増幅効率がどのように異なるかを検証するための比較実験を行った。具体的には、増幅器に用いていたダブルクラッド ZBLANファイバーを、同等のパラメーターを持つダブルクラッド石英ファイバーと交換して、同様の増幅実験を行った。その結果、図6のように、石英ファイバーを用いた場合、ZBLANファイバーを用いた場合に比べてはるかに増幅効率が低くなることがわかった。

過去の石英ファイバーを用いた実験の文献値を調べると、文献によって効率が大きく異なっており、増幅器に入れる前のシード光の強度に効率が強く依存することが予想されたため、シード光の出力を強くして再度増幅実験を行うことにした。具体的には、シード光源をハイパワーのオシレーターに置き換えることで、増幅前のパワーを5倍程度に引き上げることができた。この高出力のシード光を用いた場合の結果(図6強シード)を見ると、確かに増幅効率が向上していることがわかる。

これらの観察結果については、ZBLANと石英のフォノンエネルギーの違いで説明できる。ツリウム添加石英ファイバーにおいて、励起状態に上がった電子は、シード光を入れない状態ではマルチフォノン緩和または自然放射によって基底状態に戻ってくることになる。この際、石英は比較的フォノンエネルギーが大きいためマルチフォノン緩和が起きやすく、シード光を入射しない場合 9割以上の電子がマルチフォノン緩和によって基底状態に戻ることになる。すると、シード光を入れた場合でもマルチフォノン緩和の影響が無視できず、誘導放出がマルチフォノン緩和との競合になるため、効率よく増幅するためにはシード光を強くする必要がある。また、マルチフォノン緩和が強

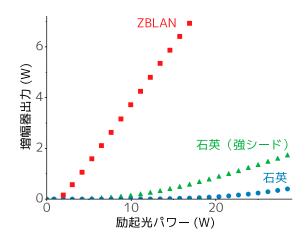


図 6 ZBLAN ファイバーと石英ファイバーを用いた 場合の増幅効率の比較。

いために寿命が非常に短くなるので、反転分布を維持する ために励起パワーも非常に強くする必要がある。すなわち、 ツリウム添加石英ファイバーにおいて効率よく増幅する ためには、シード光と励起光の両方を強くする必要がある と言える。これに対し、ZBLAN ではフォノンエネルギー が小さいためマルチフォノン緩和の次数が高くなり、結果 としてこの過程の起きる確率が著しく小さくなるため、実 質的にマルチフォノン緩和を無視することができる。これ は、反転分布の形成においては励起光強度が比較的低くて も構わないことを意味し、誘導放出においてはシード光が 弱くても構わないことを意味する。すなわち、ZBLAN フ ァイバーを用いた場合、シード光や励起光の強度が低くて も効率よく増幅できると言える。ただし、本研究よりもは るかに高いパワー、たとえば数百ワットの励起光を用いた 場合には、石英ファイバーの場合でも同等のスロープ効率 が得られる。

以上の結果をまとめると、数ワット程度のパワーにおいては、ZBLANファイバーを用いることで非常に効率のよい増幅が可能になることがわかる。数ワットの出力は多くの応用にとって十分な出力であり、これらの応用にとってZBLANファイバーを用いた増幅が有力な選択肢となりうることを示せたと言える。

2.3 増幅器内非線形効果を用いた超短パルス増幅

上記のチャープ・パルス増幅システムでは、増幅時にスペクトル幅が狭くなってしまい、短いパルス幅を維持したまま増幅するのが難しかった。この原因については2.1節でも述べたが、ゲインナロウイングおよびツリウムイオンによる吸収が考えられる。

ツリウムイオンによる再吸収を抑制するには、反転分布の形成度合いをより強くしてやる必要がある。このためには、ファイバーに励起光を強く吸収させる必要があるが、一般的なダブルクラッドファイバーを用いたクラッド励起ではこれを実現するのが難しい。これに対し、励起光を

増幅用ファイバーのコアに直接入射してコア励起を行うことができれば、反転分布を強く形成できると期待できる。そこで、ビーム品質のよいシングルモード出力の波長1.6 μm の励起光源を用意してコア励起を試みた。

また、ゲインナロウイングへの対抗策として、ファイバー内での非線形効果を利用したスペクトル拡張を試みた。 具体的には、ストレッチャーおよびコンプレッサーを取り除いてチャープ・パルス増幅をやめることで、増幅ファイバーでのパルス幅がある程度短くなりピーク強度が高くなるようにした。これにより、増幅ファイバー内において自己位相変調などの非線形効果を起こさせ、それを利用することでスペクトルの拡張を試みた。

このような系において増幅を行った際の、スペクトルの 変化の様子を図7に示す。励起パワーを上げるにつれてス ペクトルが広がっていく様子が明確に見て取れる。これは、 増幅ファイバー内で自己位相変調が起きたためと考えら れる。これらのパルス形状を FROG 法で測定していくと、 スペクトルが広がるにつれ、パルス幅が短くなっていくこ とがわかった。励起光強度が 13 W の時の出力を FROG 法 によって測定し、それを解析することによって得られたパ ルス波形を図8に示す。このパルスの時間幅は48フェム ト秒となっており、レーザー発振器からの出力と同程度の 時間幅を持つパルスが得られていることがわかる。また、 この時の出力パワーは 2.5 W であった。特筆すべき点とし て、これらの測定においてコンプレッサーを使用していな いことが挙げられる。すなわち、増幅ファイバーから直接 超短パルスが出力されていることになる。このため、コン プレッサーによるロスがないのはもちろん、光学系も単純 になり、チャープ・パルス増幅システムよりも取り扱いが より簡単なシステムとなっていると言える。出力パワー自 体はチャープ・パルス増幅システムのものよりもやや劣る が、パルス幅は約1/3となっており、ピークパワーはより 高くすることができた。

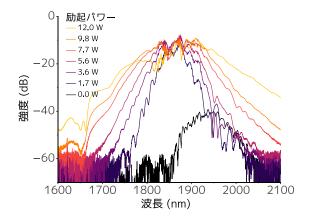


図7 励起光強度を上げていった際のスペクトルの変化の様子。

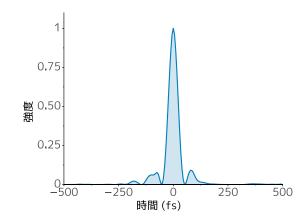


図8 FROG法での測定結果を解析することによって 得られた、非線形効果を用いた増幅後のパルス 波形。

2.4 アクリル板への照射テスト

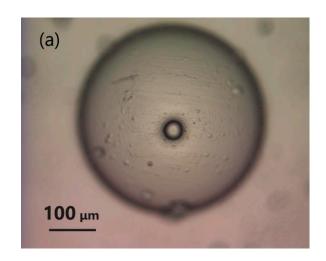
開発したレーザーシステムの加工応用に向けたテストとして、アクリル板をサンプルとしてレーザー光を照射した。アクリル板は可視光に対して透明だが、波長 $2 \mu m$ 近傍では比較的吸収率が高く、低いパワーで加工が可能だと期待される。一方、 CO_2 レーザーと比べると吸収が少ないが、その分周囲への熱損傷が少ない加工ができると期待される。

図9に500mWの出力で1秒間照射した際の加工跡の写真および3次元測定結果を示す。中心部に径40 μmのスポットが見られるほか、周囲に径400 μmの膨らみが観察された。これは、中心部がレーザーによる窪みであり、周辺はレーザーが吸収された際の熱によって膨張したものと考えられる。この結果から、より精密な加工には、照射パワーや照射時間を減らすことで熱の影響を低減させる必要があることがわかる。加工条件などの詳細なパラメーターを最適化していくことによって、より効率がよく、より精密な加工が可能になると期待される。

2.5 パルスエネルギーの増強

2.3 節のレーザーシステムは繰り返し周波数が高い一方、パルス一つあたりのエネルギーは低いため、集光した際の強度も比較的低い。このパルスエネルギーを引き上げることができれば、集光した際の強度を向上させ、非線形過程を効果的に利用することが可能となる。

パルスエネルギーをさらに増強するための最も単純な 手法は、増幅器をもう一段追加することであるが、そのためには非常に高出力な励起光源が必要となる。より手軽に高いパルスエネルギーを得るためには、パルス列の繰り返し周波数を減らして増幅するのが効果的である。すなわち、パルスを一旦間引き、残ったパルスのみを増幅することで、平均パワーをあまり上昇させることなくパルスエネルギーを引き上げることが可能となる。



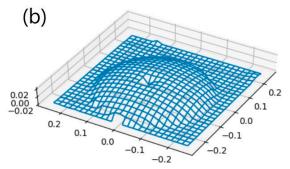


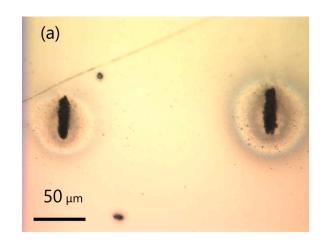
図9 アクリル板に平均出力500 mWで1秒間照射した際の加工跡の(a)写真、および(b)3次元解析結果(各軸の単位はmm)。

そこで、一段目の増幅器の出力パルス列を、ポッケルスセルと呼ばれる電気光学素子に通すことで、繰り返し周波数を 67 MHz から 1 MHz まで低減させた。この際、パルスの数が減った分、平均出力も下がっている。このパルス列に対し、2.3 節の増幅器と同様の増幅器をもう一段用意することで、再度平均出力を 2 W 程度まで増幅した。これにより、平均出力はほとんど変わらないものの、パルスエネルギーは 2 μ J 程度と、増幅前の数十倍に増強することが出来た。この際のパルス幅は約 200 fs で増幅前の約 4倍になっているが、これを考慮しても集光時のピーク強度は 10 倍以上になっており、より効果的に非線形効果を利用することが可能となる。

2.6 シリコン板への照射テスト

シリコンは波長 2 μm の光を透過するため、この波長の 光を普通に照射しても加工することは容易ではない。しか し、超短パルス光を集光することで高強度の光を集中させ れば、2 光子吸収などの非線形相互作用が生じて加工する ことが可能となる。2 光子吸収を起こすには非常に高い強 度の光が必要となるため、この現象は集光点近傍のごく限 られた領域のみによって引き起こされる。すなわち、加工 領域を限定することができる。また、材質表面のみならず、 内部や裏面に加工することも可能となると期待される。

そこで、シリコンウェハーをサンプルとして、高パルス エネルギーのパルス光を集光することで加工を試みた。図 に、同じスポットに1秒および10秒間照射した結果及び、 手動のマイクロメーターステージによってスキャンしな がら加工した結果を示す。なお、レーザー光は Brewster 角 に入射させた。すなわち、いずれの画像においても紙面の 斜め上方向から入射している。1点への集光では、幅 10 μm、 高さ 40 µm 程度の大きさのスポットができていることが わかる。高さ方向に長いのは、斜めに光を入射したためと 考えられる。10 秒間集光した場合は、ややスポットが汚 くなっているものの、横方向のサイズに大きな違いは生じ ていない。また、横方向にスキャンした結果、幅 40 μm の 直線状にシリコンを加工することができた。この波長域の 光はシリコンに対して非常に透過率の高い光であるため、 これらの変質は 2 光子吸収をきっかけとして起きたと考 えられる。今回は Brewster 角に入射するという実験条件 の都合上、幅の広い直線になったが、垂直に近い角度で入 射すれば、より幅の細い構造も加工できると期待される。



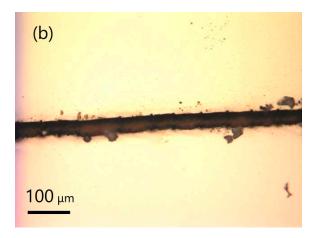
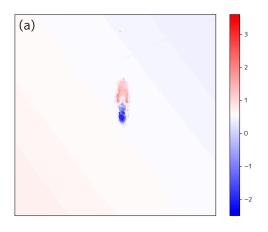


図 10 (a)レーザーパルスを 1 秒間 (左) および 10 秒間 (右) 照射した際に生じたスポット。(b)手動ステージにて掃引した加工跡。



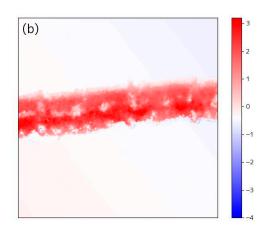


図 11 (a)レーザーパルスを 1 秒間照射したスポット の 3 次元形状。(b)手動ステージで掃引した加 工跡の 3 次元形状。

これらの加工跡をさらに詳細に3次元測定したところ、表面にデブリのような構造が残っていることがわかった。このデブリを除去した後の表面の形状を3次元測定した結果を図に示す。赤い領域は盛り上がっている領域であり、青い領域は窪んでいる領域である。このことから、1点に集光した際は数マイクロメートル程度のくぼみができているものの、くぼみの脇に盛り上がりが生じていることがわかる。また、レーザー光を掃引した場合は、基本的にレーザーが当たった領域の近傍が盛り上がっており、その中央部がわずかに窪んでいることがわかる。いずれの場合も盛り上がりが生じているが、パラメーターを調整することでこれらの形状が変わってくると考えられる。

以上のように、2 光子吸収を利用してシリコンウェハーの表面に加工を施すことに成功した。将来的には、パラメーターを調整することでより効率よく品質の高い加工を目指すほか、この波長域の高い透過性を活かしてシリコンの内部や背面への加工の可能性も探求したい。

3. まとめ

ツリウム添加 ZBLAN ファイバーを用いて、波長 2 μm 帯における超短パルスレーザー増幅器を開発した。

通常のチャープ・パルス増幅システムを開発することにより、平均出力 3.9 W、パルス幅 150 フェムト秒のパルス列を繰り返し周波数 67.5 MHz で得ることができた。さらに、この出力を石英ファイバー増幅器と比較した結果、ZBLANを用いれば数ワット程度の出力であれば非常に効率よく増幅できることが分かった。また、あえてチャープ・パルス増幅をやめ、増幅ファイバー内の非線形効果を利用することで、増幅後においてもスペクトル幅を非常に広くすることができ、時間幅 48 フェムト秒という非常に短いパルスを平均出力 2.5 W で得ることができた。さらに、パルスの繰り返し周波数を減らすことで、パルスエネルギーが数十倍高いパルス列を平均出力 2 W で発生させることもできている。

この光源を利用して、アクリル板やシリコン板をサンプルとした加工を試み、それぞれサンプル表面に変質が生じているのを確認できた。これらのパラメーターを調整していくことで、加工の品質を上げていくことが可能となると考えられる。この新たな波長域の光源は、これらの加工例にとどまらず、これまでと異なる様々な特殊加工の実現につながると期待される。

謝辞

本研究は、公益財団法人天田財団の一般研究開発助成のご支援を受けて行われました。また、ファイバーラボ株式会社の三村榮紀氏、小川和彦氏には、フッ化物ファイバーのご提供および有益なご助言をいただきました。ここに謝意を表します。

参考文献

- Yutaka Nomura and Takao Fuji, "Efficient chirped-pulse amplification based on thulium-doped ZBLAN fibers," Appl. Phys Express 10, 012703 (2017).
- Yutaka Nomura and Takao Fuji, "Generation of watt-class, sub-50 fs pulses through nonlinear spectral broadening within a thulium-doped fiber amplifier," Opt. Express 25, 13691 (2017).