



S. Tokota

透明材料加工のための 高出力中赤外レーザの開発

時田 茂樹*

1. まえがき

固体レーザ技術の進展により、小型・高効率かつ信頼性の高い高出力レーザ光源が産業・医療などで実用に供されるようになった。レーザ光源への要求は益々高度化・多様化しており、高出力化、短パルス化、高効率化、新波長帯開発など、様々な研究開発が行われている。本研究では主要な課題の一つである中赤外域における長波長帯レーザ開発に注目した。長波長レーザの実用化が難しい背景として、利用可能なレーザ媒質および励起光源が限られていること、石英等の一般的な光学ガラスの赤外吸収端を超える波長であることなどが挙げられる。しかし、産業界からの中赤外レーザのニーズは大きく、有用性が広く認識されている。例えば、可視～近赤外光に対する吸収係数が小さいガラスや樹脂などの透明材料の加工に、波長 2.5～5 μm の中赤外レーザが有用であると考えられている。

本研究では、中赤外レーザ光を直接発生でき、将来的に更なる高出力化が可能な新規固体レーザ技術、ならびに、中赤外レーザを用いた樹脂加工技術の確立を目指し、Er:Lu₂O₃ レーザ、Fe:ZnSe レーザ、および、中赤外レーザによるプラスチック光ファイバの融着接続に関する基礎実験を行った。

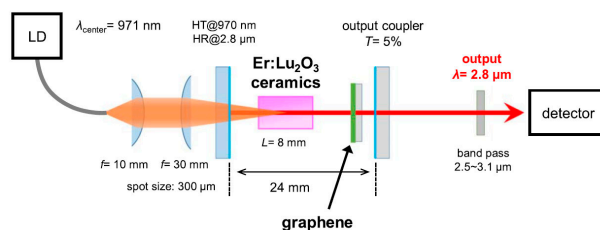
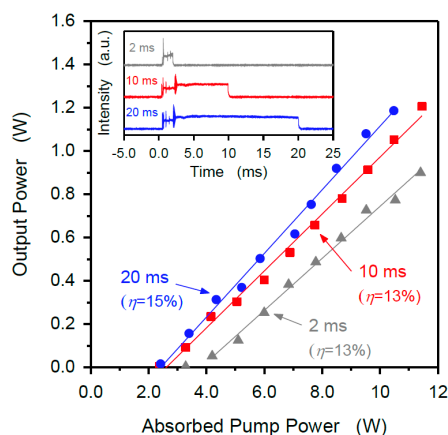
2. Er:Lu₂O₃ レーザ

2.1 概要

中赤外域の高ピーク出力パルスレーザを実現するため、2.8 μm 帯で利得が得られる Er 添加固体材料をレーザ媒質として用いる。Er 添加固体レーザ材料の候補として、Er 添加フッ化物ガラス¹⁾と Er 添加セスキ酸化物結晶²⁾が挙げられる。フッ化物ガラスは、近紫外から中赤外域にまたがる幅広い透過波長域を有し、希土類イオン添加時の発光効率が優れているため、レーザホスト材料として高い潜在能力を秘めている。しかし、耐湿性、耐熱性、機械強度が著しく低いため実用性に乏しい。そこで本研究では Er 添加セスキ酸化物結晶に着目した。Er 添加セスキ酸化物結晶は、比較的低いフォノンエネルギーを有するため、2.8 μm 帯での発光効率高い。また、高い熱伝導率を有するため、高平均出力動作が期待できる。ここでは、Er 添加 Lu₂O₃ セラミックスを用いた高出力連続波レーザ³⁾ならびに Q スイッチパルスレーザ⁴⁾の実験結果を報告する。

2.2 実験装置

実験装置の概略図を図 1 に示す。11 at.%-Er 添加 Lu₂O₃ 透明セラミック結晶（長さ 8 mm）を 2 枚の平面ミラーを用いた長さ約 12 mm の共振器内に導入し、中心波長 976 nm の半導体レーザを結晶中に集光することで励起した。出力ミラーは波長 2.9 μm で反射率 97.5% のものを用い、2.5～3.1 μm のみを透過するバンドパスフィルターを通した後、出力パワーと時間波形をそれぞれパワーメーターと InAs 検出器で測定した。発振特性についてより詳細に検討するため、分光器を用いて時間分解スペクトルを測定した。

図 1 Er:Lu₂O₃ レーザの概略図図 2 Er:Lu₂O₃ レーザの入出力特性

2.3 実験結果

図 2 に、各励起パルス幅（デューティ比はいずれも 2%）におけるレーザ入出力特性と時間波形を示す。パルス幅が長くなるに従って、発振効率が高く、閾値が低くなっている。励起パルス幅 20 ms において、15% のスロープ効率と

* 京都大学 教授

約 2 W の閾値を有し、約 10 W 励起で 1.2 W のピーク出力を達成した。また、時間波形を見ると、いずれのパルス幅においても、1 ms 以内の立ち上がり時間で発振し、約 2.5 ms までにかけて出力に顕著な揺らぎが確認された。図 3 に、10 ms パルス励起における時間分解スペクトルを示す。励起パワーは図 2 中の時間波形と同じ 7 W である。波形に揺らぎが確認された約 2 ms までの時間スケールにおいて、2715, 2725 nm の 2 波長帯で発振し、それ以降は 2740, 2840 nm の 2 波長帯で発振しているのがわかる。このような発振波長が長波長シフトする現象は、これまでにも Er:Lu₂O₃ 結晶で報告されており、短波長側での再吸収が原因と考えられる。2 ms 励起の場合、短波長側のみが発振するため、効率が低かったと考えられる (図 2)。これらの結果から、CW 励起の場合、長波長側の 2 波長帯のみでの発振が推測される。本システムにおいて、すでに室温での CW 動作も確認しており、現段階ではスロープ効率 17% を達成している。これは現在 Er:Lu₂O₃ セラミックレーザで報告されている最高効率である。

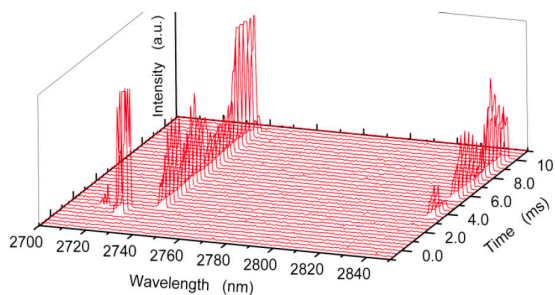


図 3 Er:Lu₂O₃ レーザの発振スペクトル

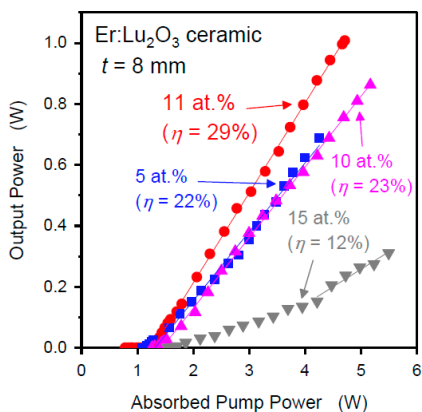


図 4 レーザ効率の Er 濃度依存性

さらなる高効率・高出力化のため、Er³⁺添加濃度依存性について調査した。レーザ媒質として、Er³⁺添加 Lu₂O₃ 透光性セラミックス (添加濃度: 5, 10, 11, 15 at.%) を用いた。2 枚の平面ミラーを組み合わせた共振器内に、20°C で水冷した Er:Lu₂O₃ を導入し、中心波長 970 nm の LD で励起することで CW 発振特性を評価した。図 4 に入出力特性を示す。15 at.% サンプルは効率が著しく低く、濃度消光が生

じている可能性が考えられる。濃度 5, 10, 15 at.% においてスロープ効率は 20% 以上であり、特に 11 at.% サンプルでは最高効率 29% を達成した。また、励起パワー 10 W における出力は 2.3 W であった。これは現在 Er:Lu₂O₃ セラミックレーザで報告されている最高効率・最高出力である。Er³⁺添加濃度によって効率が変化した原因のひとつとして、Er³⁺イオン濃度の増加に伴い、レーザ下準位 (⁴I_{13/2}) イオン間での協同アップコンバージョンが促進し、下準位の寿命が短くなることが考えられる。濃度依存性について、より考察を深めるため、今後、寿命測定を行う予定である。また、各サンプルの透過スペクトル測定をおこなった結果、セラミックスの光学品質が発振性能に寄与している可能性が示唆された。

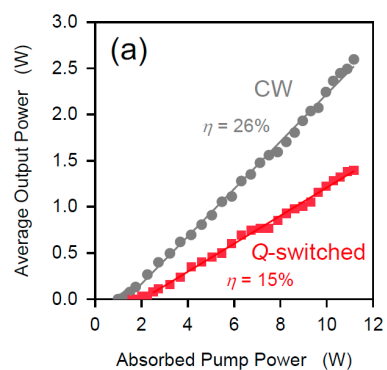


図 5 Er:Lu₂O₃ レーザの出力特性

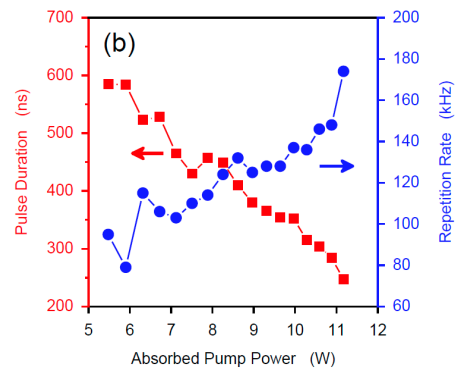


図 6 Er:Lu₂O₃ レーザのパルス幅と繰り返し周波数

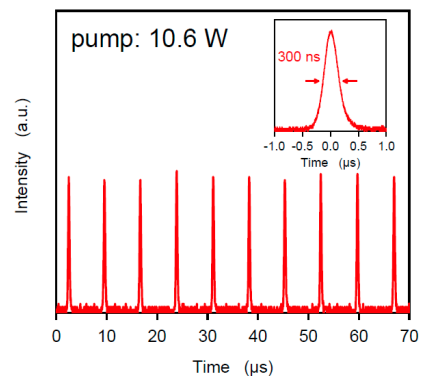


図 7 レーザパルスの時間波形

高ピーク出力化を図るため、グラフェンを可飽和吸収体として用いた受動 Q スwitchングによるパルス発振を試みた。レーザ媒質として、11 at.% Er³⁺添加 Lu₂O₃ 透光性セラミックスを用いた。2枚の平面ミラー（OC 透過率 5%）を組み合わせた共振器内に、20°Cで水冷した Er:Lu₂O₃ と単原子層のグラフェンを挿入し、中心波長 970 nm の LD で励起することで発振特性を評価した。

図 5 に平均出力、図 6 に Q スwitchパルス幅と繰り返し周波数を示す。CW 動作において、現在 Er:Lu₂O₃ セラミックレーザで報告されている最高出力である 2.6 W（11 W 励起時）を得た。グラフェン挿入時、図 7 に示したパルス列が得られ、安定した Q スwitchパルス動作を確認した。10.6 W 励起時、パルス幅 300 ns、繰り返し周波数 140 kHz、平均出力 1.3 W であった。励起パワーの増加にしたがってパルス幅が短くなり、繰り返し周波数が増加した。パルスエネルギーは最大で 9.4 μ J、ピーク出力 33 W であり、いずれも現在 Er:Lu₂O₃ で報告されている最大値である。

3. Fe:ZnSe レーザ

3.1 概要

Fe:ZnSe レーザは、1999 年に米国の Adams らが初めて発振に成功し⁵⁾、およそ 4~5 μ m の幅広い波長域で発振が得られる波長可変レーザとして期待され、研究が続けられている。これまでに、3.6~5.2 μ m の波長可変レーザ発振⁶⁾、フェムト秒パルス増幅⁷⁾、液体窒素温度における 35 W の高平均出力パルスレーザ発振⁸⁾などが実証されている。しかし、2.5~4 μ m の中赤外域に励起帯を有するため、使いやすい励起光源がなく、幅広い実用化には至っていない。本研究では、世界で初めて、高出力・高安定・高ビーム品質な 2.8 μ m 帯ファイバレーザを励起光源として用いることで、Fe:ZnSe レーザの高効率発振を実証した⁹⁾。

3.2 実験装置

Fe 濃度が $2.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ および $3.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の二つの Fe:ZnSe 結晶をレーザ増幅媒質として用い、比較実験を行った。これらの結晶は気相成長法により育成され、高い均一性と低損失を実現している。低濃度結晶の寸法は 10 mm×10 mm×8.5 mm で、10 mm×10 mm の 2面を光学研磨してある。高濃度結晶の寸法は 8 mm×3 mm×8 mm で、3 mm×8 mm の 2面が研磨面である。室温での Fe:ZnSe 結晶の上準位寿命は 370 ns と短いため、CW 発振を行うには極めて高い励起強度が必要となる。そのため、室温での CW 発振は事実上困難である。本実験では、液体窒素クライオスタットを用いて結晶を 77 K まで冷却した。77 K での寿命は約 60 μ s である。温度上昇に伴う寿命の短縮は多フォノン緩和により生じる。

実験装置の概略図を図 8 に示す。レーザ共振器は真空容器内に構成した。ベローズを利用して出力ミラー（OC）を可動とすることで、共振器アライメントと共振器長の調整を可能にしている。励起光導入のために CaF₂ 窓板を使用した。レーザ共振器は平面ダイクロイックミラーと曲率

半径 50 mm の凹面ミラーで構成した。ダイクロイックミラーは励起波長（2800 nm）で高透過率（95%）、出力波長（3900~4900 nm）で高反射率（99.5%）をもつ。出力ミラーは透過率 17%と 34%の二種類を用意した。励起光源として半導体レーザ励起 Er:ZBLAN ファイバレーザ（図 9）を用い、最大出力 6.5 W の安定したシングル横モード光を得た。励起レーザの発振波長は 2.80 μ m である。励起光は焦点距離 125 mm の CaF₂ レンズによって Fe:ZnSe 結晶上で直径 250 μ m（1/e² 幅）となるように集光した。

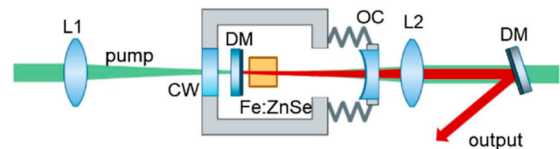


図 8 Fe:ZnSe レーザの概略図

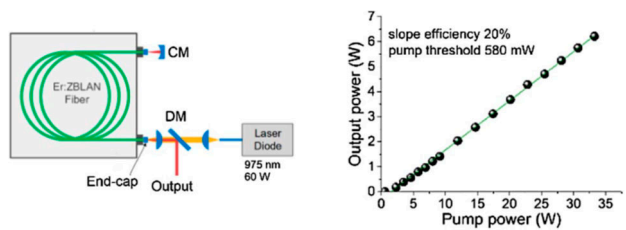


図 9 Er:ZBLAN ファイバレーザの概略図と出力特性

3.3 実験結果

Fe:ZnSe レーザの出力特性を図 10 に示す。励起光の吸収パワーは、光学系の損失と結晶の透過率の測定値から計算した。透過率 17%の出力カプラーを用いた場合、低濃度結晶で 1.49 W、高濃度結晶で 1.84 W の出力が得られた。スロープ効率はいずれの場合も約 50%であった。高濃度結晶の方が励起光の吸収率が高まるため、出力が高まったと考えられる。発振閾値はいずれの場合も約 40 mW であった。透過率 34%の出力ミラーと高濃度結晶を用いた場合に最も高い出力とスロープ効率が得られ、値はそれぞれ 2.13 W と 59%であった。焦電型ビームプロファイラ（Ophir, Pyrocam III）で測定した出力のビームプロファイルを図 10 の挿入図に示す。

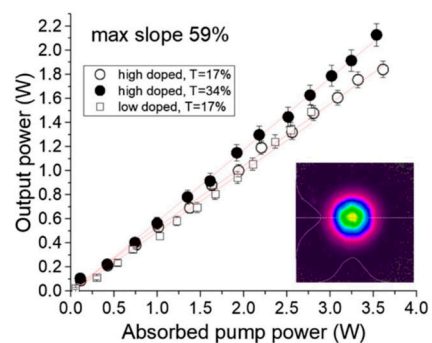


図 10 Fe:ZnSe レーザの出力特性

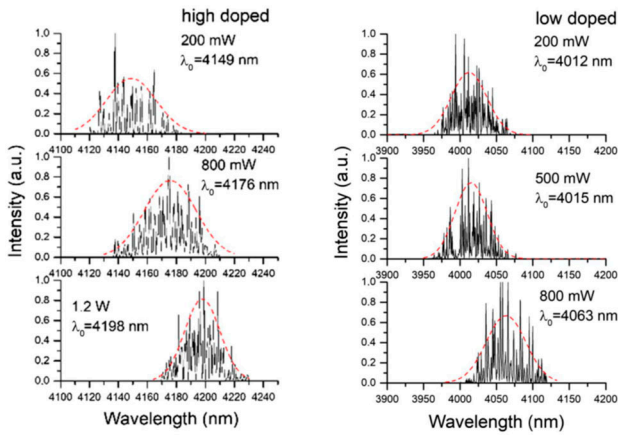


図 11 Fe:ZnSe レーザの出力スペクトル

スペクトル測定は、波長分解能 1 nm のモノクロメーターを用いて行った。測定されたスペクトルを図 11 に示す。スペクトルは多数のピークをもち、複数の縦モードが同時に発振していることを示している。200 mW から 1.2 W への出力増加に伴い、中心波長が 4149 nm から 4198 nm へと長波長側へ移動しており、これは励起に伴い結晶温度が上昇したことに起因していると考えられる。温度の上昇に伴い、吸収スペクトルは主に長波長側に広がり、発光スペクトルは短波長側に広がる¹⁰⁾。吸収スペクトルと発光スペクトルが重なり合うことで、短波長域で再吸収が起こり、その結果、出力スペクトル長波長側へ移動したと考えられる。この現象の Fe 濃度に対する依存性を調べるため、二つの結晶の出力スペクトルを比較した。図 12 に示すように、低濃度結晶は高濃度結晶に比べて短波長に広いスペクトルを示している。この結果は、Fe 濃度が高くなるほど、発振波長が長波長へシフトすることを示しており、再吸収の影響を強く受けていることがわかる。

4. 中赤外レーザによるプラスチック光ファイバの融着接続

4.1 概要

中赤外レーザ光源は、分光法、外科手術、センサなど多くの用途において重要な技術として認識されている。過去 10 年間で、中赤外ファイバレーザの高出力化に関して顕著な進展があった。我々のグループは、2.8 μm の安定した高出力産業用エルビウムドープファイバレーザを開発し、この技術の応用を探求してきた^{3,4)}。このレーザの用途の一つとして、将来の通信システムに組み込まれる可能性のあるプラスチック光ファイバ (POF) の融着接続が挙げられる。POF は、コスト効率、安全性、柔軟性、および、センシングデバイスとしての利用など、さまざまな利点を有する。これまでに POF の融着接続のために試行された手法として、電気アーク融着やポリエーテルエーテルケトン (PEEK) チューブを使用した熱融着などがある⁵⁾。電気アーク融着は、高温を必要とするシリカガラスファイバに広く利用されているが、POF への利用では熱的な劣化を

引き起こす可能性がある。CO₂ レーザは POF の融着接続の代替手段として使用できるが、ポリメチルメタクリレート (PMMA) などの低融点ポリマーは CO₂ レーザ光を過剰に吸収するため、適さない場合がある。ファイバの半径方向に均一な加熱を達成するためには、レーザビームを分割して多方向から照射を行う必要がある。これは、波長 10.6 μm の CO₂ レーザが供給する発熱密度が高すぎるためである (図 12)。より均一な加熱を実現するためには、比較的低い吸収率をもつ波長のレーザが適している。市販の CO₂ レーザとは異なり、我々が開発した波長 2.8 μm の Er ファイバレーザは、約 1.0 の M^2 値で高品質のビームを提供し、最大 30 W の安定した出力を実現している⁶⁾。

本研究は、波長 2.8 μm の連続波 Er ファイバレーザを用いて POF の融着接続を実証したものである。この装置は接着剤や他の処理を必要とせず POF を加工することができる。さらに、これらのファイバの樹脂は 2.8 μm で適度なエネルギー吸収を示すため、POF に照射されるレーザビームを分割する必要もない。本手法の有効性は、融着後の POF の光透過率、引張強度および曲げ強度を評価することで検討された。

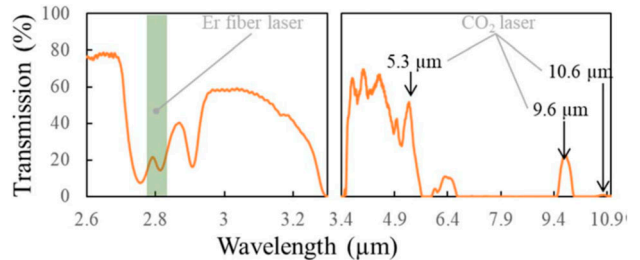


図 12 厚さ 0.2 mm の PMMA フィルムの赤外線透過スペクトルと、Er ファイバレーザおよび CO₂ レーザの発光線

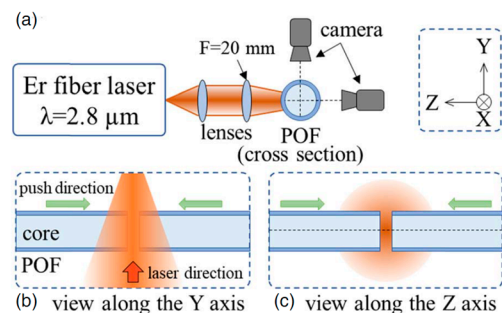


図 13 中赤外ファイバレーザを使用した POF 融着の実験装置の概略図、(a)装置全体、(b)Y 軸から見た図、(c)Z 軸から見た図

4.2 実験装置

本実験では、市販の POF (PMMA 製、直径 0.5 mm の ESKA-GCK-20E、三菱ケミカル製) を使用した。図 13 は POF の融着に使用した実験装置の概略図である。ここで、

図 13(b)と図 13(c)は、それぞれ Y 軸および Z 軸方向から見た図である。この装置では、焦点距離 20 mm の CaF₂ レンズが 2.8 μm のレーザービームを焦点に合わせ、焦点でスポットサイズを 15 μm にした。予備実験の結果に基づき、レーザーの焦点は POF の反対側の表面から 1.0 mm の距離に位置させた (図 13(b)参照)。この構成により、ファイバの均一な加熱が可能となった。なお、焦点が POF よりもレーザー光源に近い場合、ファイバ端がレーザー光源に向かって曲がり、融着が失敗することが分かっている。

4.3 実験結果

融着の各段階を示す図と顕微鏡で撮影した写真を図 14 に示す。このプロセスでは、2 本のファイバー (POF1 と POF2) が個別の 3 軸ステージに取り付けられた (図 14(a))。POF の端面を互いに向き合わせ、2 方向からの顕微鏡画像を観察しながら調心を行った。図 14(b)に示すように、POF の先端と先端をほぼ接触するまで近づけ、80 mW のレーザー光を照射して先端を予熱した。この予熱の後、レーザー出力を 120 mW に増加し、ファイバ先端を設定距離 (Δx) だけ移動させることで同時に接合した。この時、2 本のファイバの光軸 (図 14(c)) を接合後に再度調心し、光透過率が最大の時にレーザー照射を停止することで接合損失を低減することができる。

図 15 は、接合された POF サンプルの許容曲げ半径値を Δx の関数としてプロットしたものである。ここで許容曲げ半径とは、ファイバが折れない最大の曲げ半径を意味する。POF は、半径が 1.5 mm~30 mm の円筒面に沿って曲げられた。これらの値は、曲げ半径が小さいほど強度が高いことを示しており、接合された POF の曲げ強度の指標となる。図 15 からわかるように、 Δx が増加するにつれて許容曲げ半径は減少し、 Δx が 0.375 mm 以上の場合、最小半径は 1.5 mm 未満であることが確認された。

さまざまな試料における融着点の引張強度は、各 POF サンプルを 2 つのクランプで固定し、フォースゲージを使用して評価した。これらの試験では、各 Δx 値に対して 3 つの接合された POF サンプルが作成され、テストされた。各接合ファイバを引張り試験装置に取り付け、融着点に張力をかけた。図 16 に示すように、引張強度は Δx の増加に伴って増加し、13.5 N で飽和した。これは、ファイバ自体が伸びることにより、張力が 13.5 N で値が頭打ちになるためである。この結果に基づき、元の POF の引張強度を 13.5 N と仮定すると、融着点および元の POF の引張強度はそれぞれ 4.92 N/m² および 17.2 N/m² と算出された。この結果は、融着点での引張強度が十分に高いことを示している。ただし、融着点で得られた高い引張強度は、元の POF 直径と比較して部分的に直径が増加したことが要因の一つになっていることに注意する必要がある。

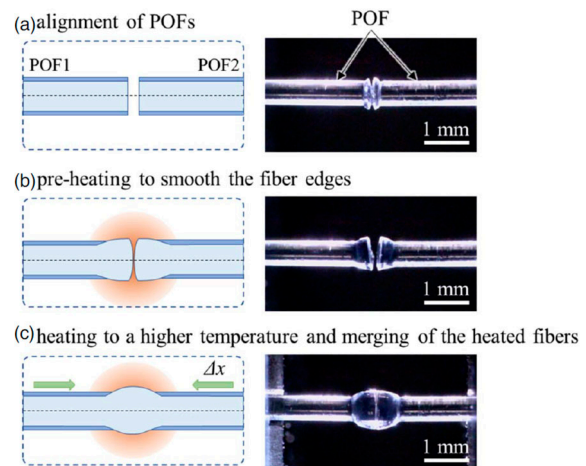


図 14 融着接続の手順, (a)POF の位置合わせ, (b)ファイバ端を平滑にするための予熱, (c)接合のための加熱

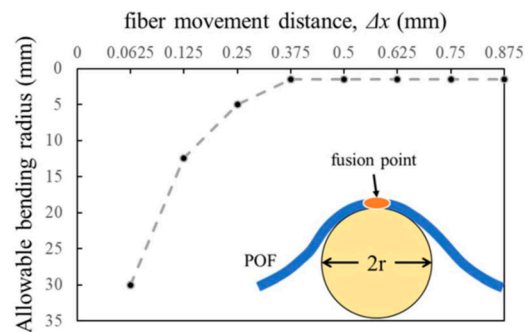


図 15 許容曲げ半径のファイバ移動距離 Δx 依存性

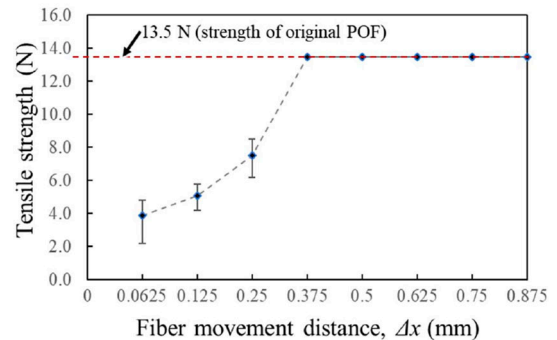


図 16 引張試験装置の写真, 引張強度のファイバ移動距離 Δx 依存性 (赤い破線は元の POF の引張強度を示す)

5 つの接合 POF サンプルについて、接合点における光透過特性が評価された。これらの試験では、レーザーダイオード (LD, Civil Laser, LSR660-NL) およびフォトダイオード検出器 (PD, Ophir, PD300-1W) が、接合された 2 本のファイバの接合点の両側に配置された (図 17(a)参照)。図に示すように、クラディングモードによる PD への光伝搬を軽減するため、POF2 の長さは 3 m 以上とした。純粋な接合損失を評価するために、伝送損失および POF への結合損失を、接合前後の透過電力を比較することで排除した。

Δx が増加するにつれて許容曲げ半径および引張強度の値が増加するのは対照的に、光透過率は徐々にかつ断続的に減少した(図 17(b)参照)。図 17(c)は、LD 照射中の接合点の顕微鏡で取得した写真である。透過率の低下は、接合点での直径が増加するにつれて、モードミスマッチの影響が増加したことに起因する。すなわち、 Δx を減少させることで、接合点での透過損失を減少させることができた。最大透過率は $\Delta x = 0.063$ mm で 0.76 であった。この Δx の値は、接合中に POF を操作するために使用されたステージの手動操作で得られる最小値であった。 $\Delta x = 0.875$ mm のデータを除き、最大および最小透過率の差は Δx を増加させることで減少した。これは、プロセスの再現性が向上したことを示している。

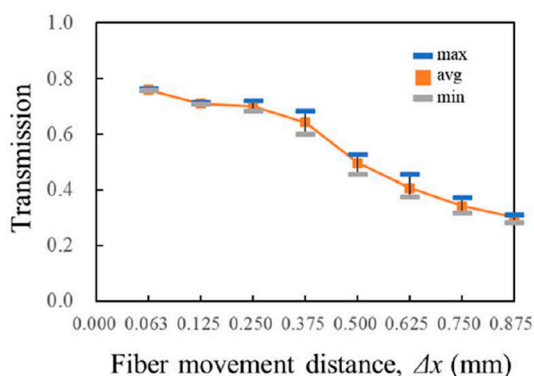


図 17 (a)透過率測定装置, (b)光透過率のファイバ移動距離 Δx 依存性, (c)融着点の写真 (LD:レーザーダイオード, PD:フォトダイオード)

結論として、本研究は $2.8 \mu\text{m}$ 連続波ファイバレーザを使用して、接着剤や他の処理を必要とせずに POF の融着接続を実証したものである。融着接続後の POF の光透過率、引張強度、および曲げ強度の値を評価した。現在の接合試料の透過特性は高品質の伝送を要求するアプリケーションには不十分であるが、引張強度と曲げ強度は実用に適している。この提案された技術は、将来の POF ネットワークの発展に寄与する可能性がある。さらに、自動ステージを使用して Δx を減少させることで、これらの接合 POF の光透過率が向上することが期待される。実用的なアプリケーションの要件を満たすファイバ特性は、今後の研究において Δx とレーザ照射条件を含む加熱プロセスの両方を最適化することによって得られる可能性がある。

5. まとめ

透明材料加工のための高出力中赤外レーザの基礎研究として、Er:Lu₂O₃ セラミックスを用いた高出力連続波レーザと Q スイッチパルスレーザ、ならびに Fe:ZnSe 結晶を用いた高出力連続波レーザの開発を実施した。Er:Lu₂O₃ レーザおよび Fe:ZnSe レーザは $2.8 \mu\text{m}$ 帯および $4 \mu\text{m}$ 帯のコ

ンパクトかつ高効率な高出力中赤外レーザ光源として有望であることが示された。特に、Fe:ZnSe レーザはおおよそ $4\sim 5 \mu\text{m}$ の幅広い増幅帯域をもつため、波長可変レーザやフェムト秒超短パルスレーザとしての応用も期待される。

さらに、波長 $2.8 \mu\text{m}$ の連続波 Er ファイバレーザを使用して、POF の融着接続を実証した。この技術は接着剤や他の処理を必要とせず、レーザビームを分割する必要もないため、効率的かつ簡便に POF を加工することが可能である。この技術は将来の POF ネットワークの発展に寄与する可能性がある。今後、プロセスの最適化を行い、実用的なアプリケーションの要件を満たすファイバ特性を得られることが期待される。

謝 辞

本研究は、公益財団法人天田財団からの一般研究助成により実施した研究に基づいていることを付記するとともに、同財団に感謝いたします。また共同研究者である核融合科学研究所の上原日和氏、安原亮氏、秋田県立大学の合谷賢治氏、モスクワ大学の F. Potemkin 氏らに謝意を表します。

参考文献

- 1) S. D. Jackson, Nat. Photonics 6, 423 (2012).
- 2) T. Li, K. Beil, C. Kränkel, and G. Huber, Opt. Lett. 37, 2568 (2012).
- 3) U. Hiyori, S. Tokita, K. Junji, M. Masanao, S. Seiji, Y. Ryo, Optics Express 26, 3497 (2018).
- 4) H. Uehara, S. Tokita, J. Kawanaka, D. Konishi, M. Murakami and R. Yasuhara, Appl. Phys. Express 12, 022002 (2019).
- 5) J. J. Adams, C. Bibeau, R. H. Page, D. M. Krol, L. H. Furu, and S. A. Payne, Opt. Lett. 24, 1720 (1999).
- 6) V. Fedorov, D. Martyshkin, Karki, Krishna, and S. Mirov, in Laser Congress 2018 (ASSL), OSA Technical Digest (Optical Society of America, 2018), paper AW3A.6.
- 7) E. Migal, A. Pushkin, B. Bravy, V. Gordienko, N. Minaev, A. Sirotkin, and F. Potemkin, Opt. Lett. 44, 2550 (2019).
- 8) D. V. Martyshkin, V. V. Fedorov, M. Mirov, I. Moskalev, S. Vasilyev and S. B. Mirov, 2015 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), San Jose, CA, 2015, pp. 1-2.
- 9) A. V. Pushkin, E. A. Migal, H. Uehara, K. Goya, S. Tokita, M. P. Frolov, Yu. V. Korostelin, V. I. Kozlovsky, Ya. K. Skasyrsky, and F. V. Potemkin, Opt. Lett. 43, 5941 (2018).
- 10) J. W. Evans, T. R. Harris, B. R. Reddy, K. L. Schepler, and P. A. Berry, J. Lumin. 188, 541 (2017).