

透明材料加工のための高出力中赤外レーザーの開発

大阪大学 レーザ科学研究所

講師 時田 茂樹

(平成 29 年度 一般研究開発助成 AF-2017232)

キーワード：中赤外レーザー，ファイバレーザー，レーザー精密加工

1. 研究の目的と背景

固体レーザー技術の進展により、小型・高効率かつ信頼性の高い高出力レーザー光源が産業・医療・科学などの分野で実用に供されるようになった。レーザー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。本研究では挑戦的な課題の一つである中赤外域における長波長帯レーザー開発に注目した。長波長レーザーの実用化が難しい背景として、適切な固体レーザー媒質がないこと、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が挙げられる。しかし、中赤外レーザー産業界からの中赤外レーザーのニーズは大きく、有用性が認識されている。例えば、可視～近赤外波長域の光を吸収しないガラスや樹脂などの透明材料の加工に、波長 2.5～5 μm 中赤外レーザー有用であると考えられている。

本研究では、中赤外レーザー光を直接発生でき、将来的に更なる高出力化が可能な新規固体レーザー技術の確立を目指し、Er:Lu₂O₃ レーザおよび Fe:ZnSe レーザの基礎研究を行った。

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ーを実現するため、2.8 μm 帯で利得が得られる Er 添加固体材料をレーザー媒質として用いる。Er 添加固体レーザー材料の候補として、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、レーザー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ー³⁾ならびに Q スイッチパルスレーザー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 の半導体レーザー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った後、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。

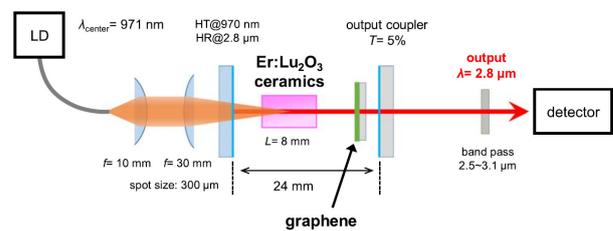


図 1 Er:Lu₂O₃ レーザの概略図

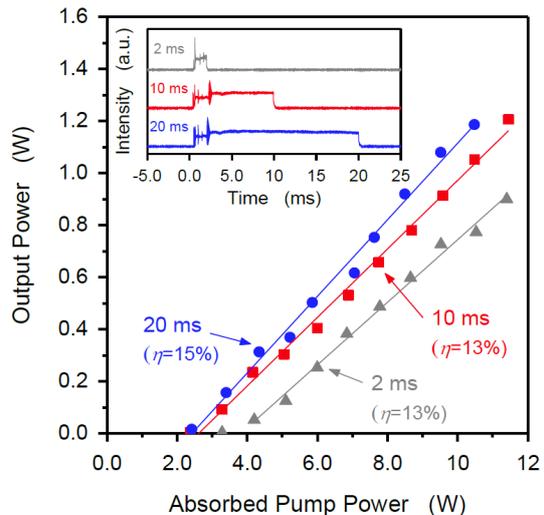


図 2 Er:Lu₂O₃ レーザの入出力特性

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%）におけるレーザー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、1ms 以内の立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、効率が低かったと推測される(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、现阶段ではスロープ効率 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。

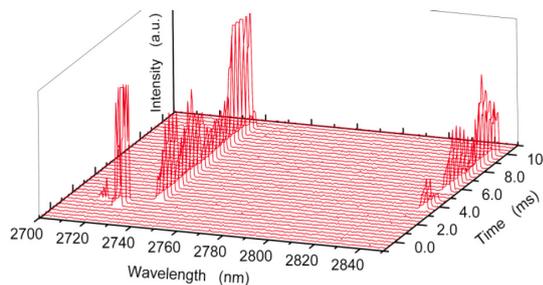


図 3 Er:Lu₂O₃ レーザの発振スペクトル

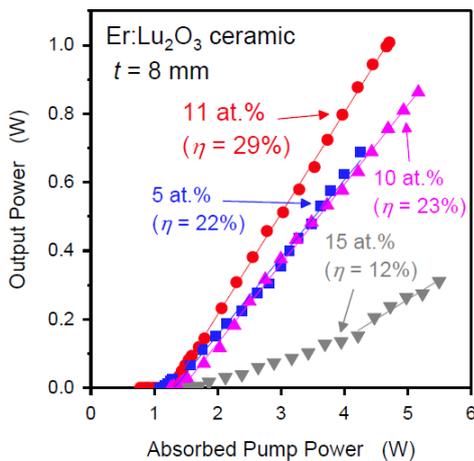


図 4 レーザ効率の Er 濃度依存性

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。図 5 に

11 at.% サンプルの発振スペクトルを示す。しきい値付近では波長 2720 nm 近傍で、励起パワー 1.5 W 以上では 2845 nm で発振していることがわかった。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。

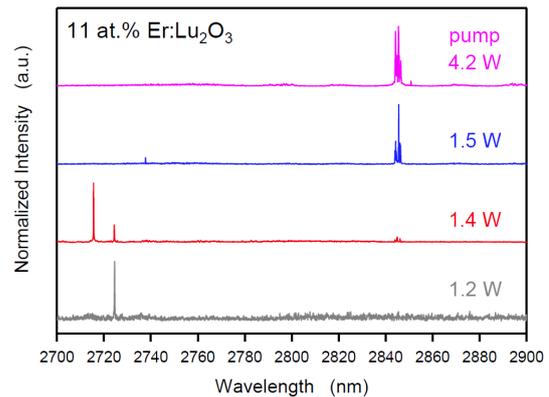


図 5 Er:Lu₂O₃ レーザの発振スペクトル

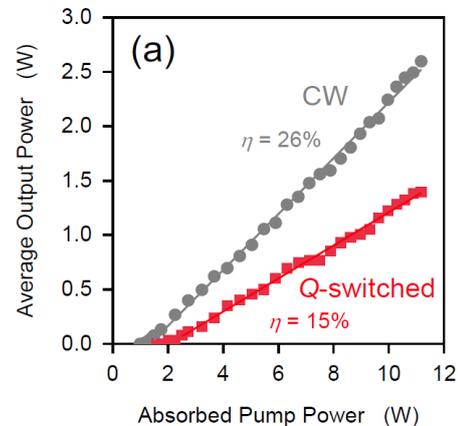


図 6 Er:Lu₂O₃ レーザの出力特性

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witching 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 6 に平均出力、図 7 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 8 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 μJ 、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。

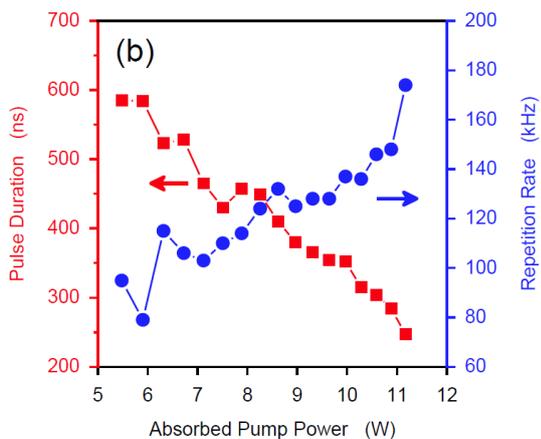


図 7 Er:Lu₂O₃ レーザのパルス幅と繰り返し周波数

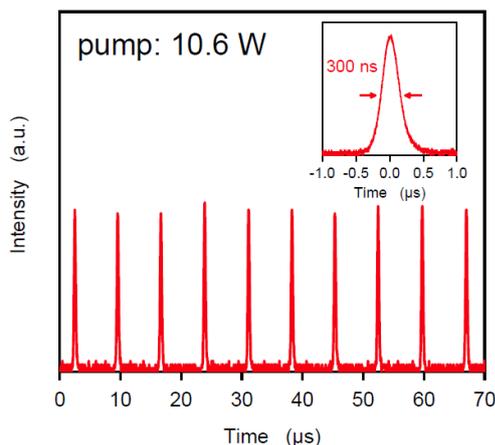


図 8 レーザパルスの時間波形

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 μm の幅広い波長域で発振が得られる波長可変レーザーとして期待され、研究が続けられている。これまでに、3.6~5.2 μm の波長可変レーザー発振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ー発振⁸⁾などが実証されている。しかし、2.5~4 μm 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 μm 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 結晶をレーザー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 μs 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 9 に示す。レーザー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。レーザー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ー励起 Er:ZBLAN ファイバレーザ (図 10) 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。励起レーザーの発振波長は 2.80 μm 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 μm (1/e² 幅) となるように集光した。

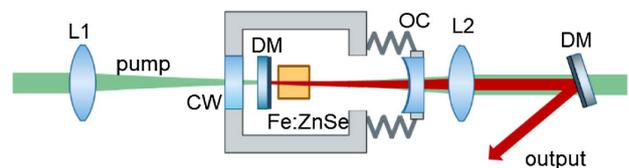


図 9 Fe:ZnSe レーザの概略図

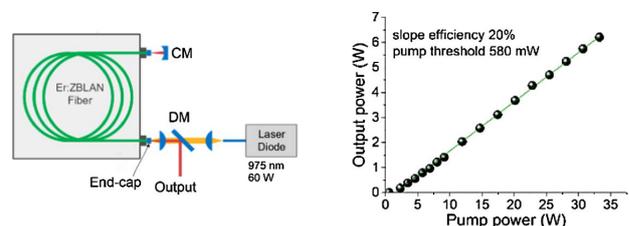


図 10 Er:ZBLAN ファイバレーザの概略図と出力特性

3.3 実験結果

Fe:ZnSe レーザの出力特性を図 11 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 11 の挿入図に示す。

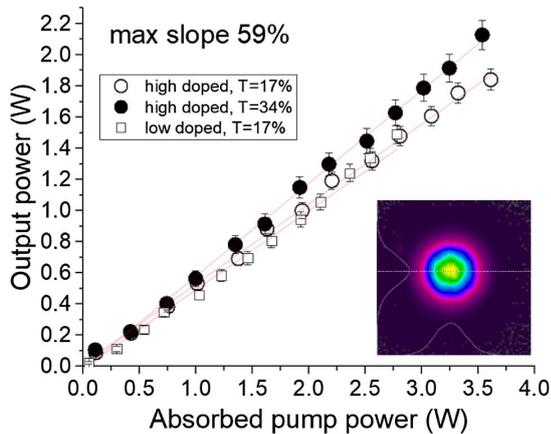


図 11 Fe:ZnSe レーザの出力特性

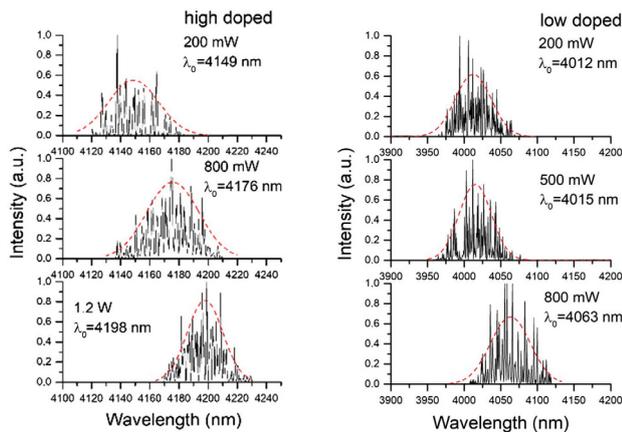


図 12 Fe:ZnSe レーザの出力スペクトル

スペクトル測定は、波長分解能 1 nm のモノクロメータを用いて行った。測定されたスペクトルを図 12 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. 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 レーザーは 2.8 μm 帯および 4 μm 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 レーザはおよそ 4~5 μm 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。

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実施しました。ここに謝意を表します。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、三星ダイヤモンド工業の村上政直氏、モスクワ大学の A. Pushikin 氏、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).