

非熱的加工用超高速繰り返し フェムト秒パルスレーザーシードの開発

慶應義塾大学 理工学部電気情報工学科
教授 田邊 孝純

(2018年度 重点研究開発助成 課題研究 AF-2018205-A3)

キーワード：モードロックレーザー，微小光共振器，マイクロコム

1. 研究の目的と背景

近年、GHz オーダの高繰り返しフェムト秒レーザー開発の機運の高まりと相まって、フェムト秒レーザーパルスによる加工に新たな進展がみられている。高繰り返しフェムト秒レーザー光源を開発することで、学術的にも工業的にも大きな進展が期待できる。

学術的な議論の例として、Ilday らによって提唱されているアブレーション冷却過程による熱損傷フリー加工¹⁾の研究が挙げられる。アブレーション冷却を活用するためには、物理現象の解明は不可欠であるが、フェムト秒レーザーによって生じるとされているアブレーション冷却過程は、完全に解明されコンセンサスが取得しているとは言えないのが現状である。この物理現象を解明するためには高度な観測技術に加え、高度に制御された高繰り返し光源の開発が必要となる。

工業的には、MHz~GHz 超の繰り返しレートの光パルスレーザーを加工に用いることで、加工のスループットの劇的な向上が期待できる。レーザー加工は、従来はフォトマスク修復など比較的加工面積の少ないマイクロエレクトロニクス分野で活用されてきたが、金属加工や炭素繊維複合材料加工などの大面積加工が必要となる分野での活用も急速に広がっている。スループットの向上はレーザー加工の喫緊の課題である。ワークを高速に移動させる必要がある場合に、高繰り返しレーザー光源を用いることは、スループット向上のために有効である。将来的なワークの移動速度のさらなる向上を加味すれば、GHz の繰り返し周波数を超えるパルス光源の開発が必要である。

以上いずれにおいても、高繰り返しで、高精度な光源の開発が求められており、その開発を進めることで、レーザー加工分野の発展に大きく貢献できる。そこで、本研究では、微小光共振器を用いた光周波数コム技術を用いた、超高繰り返しで安定したレーザー光源を開発することを目的とする。

2. 微小光共振器による光周波数コム光源

微小光共振器を用いると、光を小さな空間に強く閉じ込めることができる。共振器内部では四光波混合(FWM)が連続的に生成し、様々な波長にわたって波長変換が生じる。つまり、微小光共振器に連続光を入射するだけで、広帯域な光周波数コム光を生成できる (図 1)。光周波数コムと

は、スペクトル上でクシ状のスペクトルを有する光である。さらに、各スペクトル線(縦モード)間の位相がロックしていれば、繰り返し光パルスとなる。微小光共振器はサイズが小さいため、縦モード間隔が従来の光周波数コムとは比較にならないくらい広い。これは時間領域で説明すると、繰り返し周波数が極めて高い光パルス列が得られることを意味する。

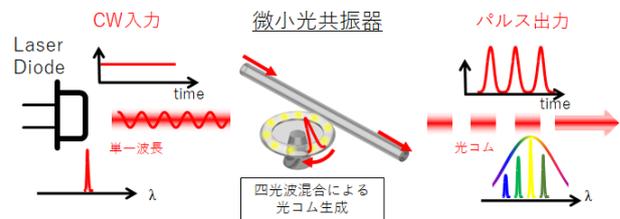


図 1 微小光共振器による光周波数コム発生

3. 光周波数コム光源としての微小光共振器

微小光共振器を用いると、光を小さな空間に強く閉じ込めることができる。本研究で開発した二つの微小光共振器を図 2 に示す。

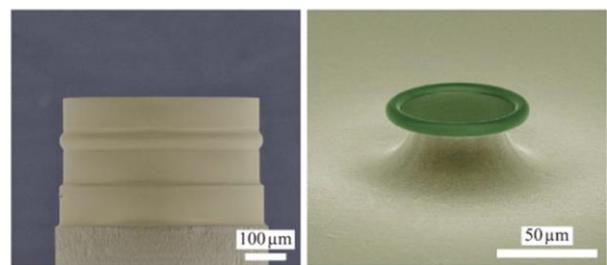


図 2 (左) MgF₂ 微小光共振器. (右) SiO₂ 微小光共振器.

この微小光共振器は以下の三つの特徴を有する。

1. Q 値が高いので非線形光学効果が効率的に得られる
2. 小型なので集積化ができる
3. 共振器長が短いので縦モード周波数間隔が広い

これらの性質がマイクロコムを他の光周波数コム光源とは異なるものとしている。しかし、この微小光共振器を用いてモードロックした光周波数コムを発生させる(すなわち、超高繰り返し光パルスを生成させる)ためには、共振器の分散を適切に設計しなくてはならないことが知られ

ている。直感的には、出力スペクトルの各縦モード間の位相をロックさせ、時間領域でパルスを形成させる必要がある。これは共振器内をソリトン光パルスが周回している状態を作り出すことと同義であり、この状態をソリトンコムと呼ぶ。つまり、光パルスがソリトンパルスとして周回し続けるためには異常分散が求められる。

4. 高繰り返し光パルスを得るための分散設計

今回我々が作製を試みた、 MgF_2 結晶ウィスバリングギャラリーモード (WGM) 共振器における分散設計の結果を示す。

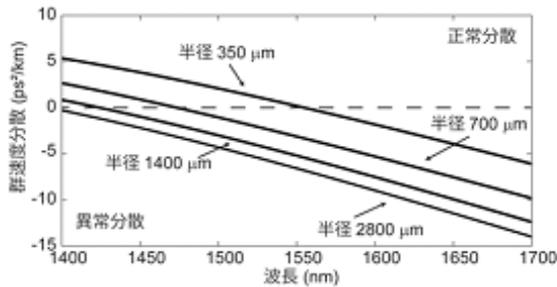


図 3 : MgF_2 結晶 WGM 微小光共振器 (断面形状球面) の異なる半径での分散

図 3 に断面形状が球面の MgF_2 共振器の分散値を示す。得られる出力光パルスの高繰り返し化を目指すために、より小さな微小光共振器の作製を目指した。自由スペクトル領域 (FSR) が 100 GHz を目指すには、半径約 350 μm が必要であるが、このサイズでは 1550 nm 帯では正常分散となってしまう。加工に用いる短波長側ではその影響はさらに顕在化する。つまり、これでは GHz を超えるような繰り返し周波数のマイクロコムは得られない。

そこで、微小光共振器の断面形状を制御することで、構造分散を設計して異常分散を実現した。この研究の過程で、WGM 微小光共振器の分散設計は、直線導波路モードの分散がそのまま共振器の分散となるシングルモードマイクロリング共振器の分散設計の思想とは異なることを見出した²⁾。

通常、構造分散は光のコアとクラッドの染み出し割合に波長依存性があることに起因すると考えられている。それは WGM 微小光共振器でも例外ではないが、それに加えて、電界モードの、回転対称中心軸からの距離に波長依存性があることが大きく寄与する。図 4(a)~4(d) に構造を変化させたときの電界分布を示すが、この例では台形上底の幅が狭いほど、電界強度分布の中心位置の波長依存性が大きく、それが異常分散化に大きく寄与する。この自由度も持つので、WGM 共振器では分散を大きく変化できる可能性がある。

図 4(e) に台形の上底の幅を 5 μm に固定して内角を変化させたときの分散計算結果を示す。角度を小さくしていくと (矩形に近づけていくと)、異常分散へ傾いていくことが

わかる。電界モードの位置を詳細にみると、波長によって電界の中心位置がずれる効果が大きく寄与していることがわかる。これらの知見をまとめたのが図 4(f) であり、寸法を変化させることで自由に分散を設計できることが示された。

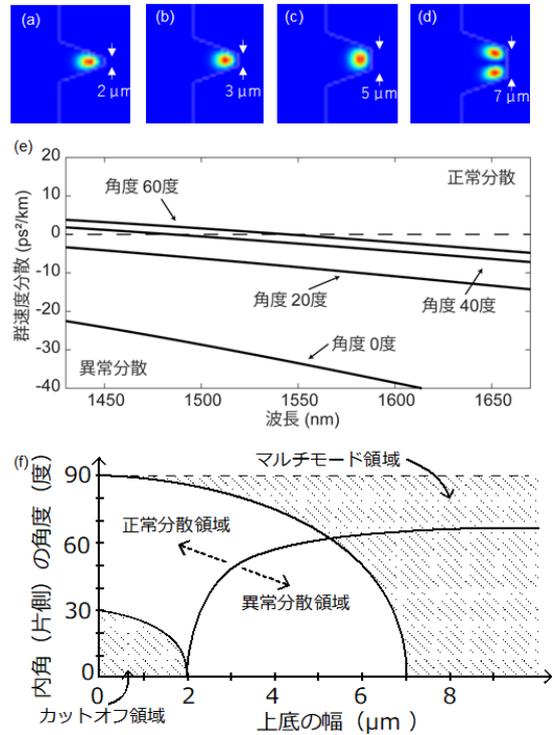


図 4 : (a-d) 半径 350 μm の MgF_2 -WGM 光共振器において、高さ 10 μm 、20 度の角度を持った台形構造の幅を変化させたときの電界モード分布。(e) 幅 5 μm の台形構造の角度を変化させたときの分散。角度 0 度は矩形形状に対応する。(f) 上記の台形断面形状の WGM 共振器の上底の幅と内角の角度をパラメータとしたときに、シングルモードかつ異常分散が得られる領域を示した概略図。

5. 精密加工による共振器の作製

分散設計した構造を作製するのは容易ではない。WGM 共振器で高 Q 値を得るためには表面を滑らかにしなくてはならないので、従来はレーザーフロ又は研磨を利用して共振器が作製されてきた。しかしこの手法では構造を任意に調整することができななので、前節で述べた精密な分散設計を行うことが難しい。

特に MgF_2 共振器は広帯域な波長に対して材料が透明であるという優れた特徴があり、加工に用いる短波長での利用にも適している。しかし、 MgF_2 共振器は、これまで研磨で作製しなくてはならず、分散設計が容易ではなかった。そこで、我々は、超精密加工技術を導入して、微小光共振器を作製する技術を開発した³⁾。

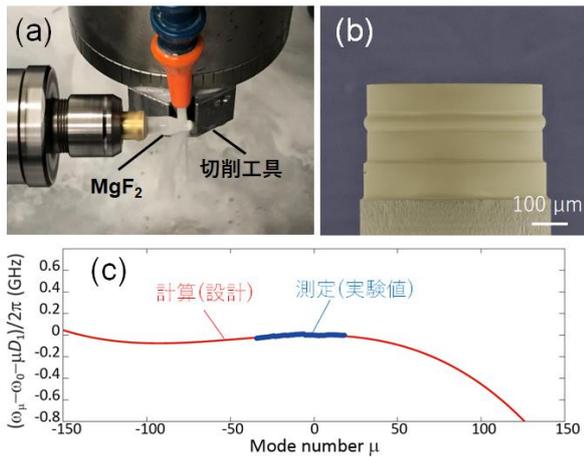


図 5 : (a) MgF₂ 共振器の超精密加工による切削加工. (b) 切削加工で作製した MgF₂-WGM 光共振器. (c) 設計した分散と測定結果.

MgF₂ 結晶は堅く脆いが、材料への切り込み深さを精密に制御して延性加工モードと呼ばれる加工を行うと滑らかな表面形状の共振器が切削加工のみで作製できる⁴⁾。切削加工は nm オーダの位置決め精度を持つコンピュータ制御で行われるので、共振器形状を極めて精密に制御できる。作製した共振器を図 5(b)に、得られた分散を図 5(c)に示す。設計値と実験で得られた分散値が正確に一致していることが見て取れる。またこの共振器の Q 値は >10⁸ であった。この成果は、高プロフィール国際学術誌である *Optica* にて発表し報道発表を行い、複数の新聞掲載がなされるなど、大きな反響を呼んだ³⁾。

精密に分散制御した微小光共振器を用いれば、FWM 光発生を高度に制御できる。2 次分散と 4 次分散が逆となるように分散を設計すると、励起光から遠く離れた波長で縮退 FWM 光を生成できる。図 6(a)に 2 次分散を正に 4 次分散を負に設計した微小光共振器の分散と位相整合を示す。4 次分散が 2 次分散を補償する形となるので、励起光モードから遠く離れた波長で位相整合がとれる。この共振器では励起光のモード番号を 0 としたときにモード数 ±500 付近で位相整合が取れている。

これを利用すると、広い波長範囲で微小な光パラメトリック光源(OPO)を実現することができる。実験セットアップは図 6(b)に示す。連続光で微小光共振器を励起しその出力を光スペクトルアナライザで測定した。その時に得られたアイドラーとシグナル光をそれぞれ図 6(c)及び 6(d)に示す。予測されたとおりに励起光波長から遠く離れた波長の光が生成できていることが確認された。また、この波長は入力光の波長をわずかに変化させるだけで大きく変化させることができる⁵⁾。

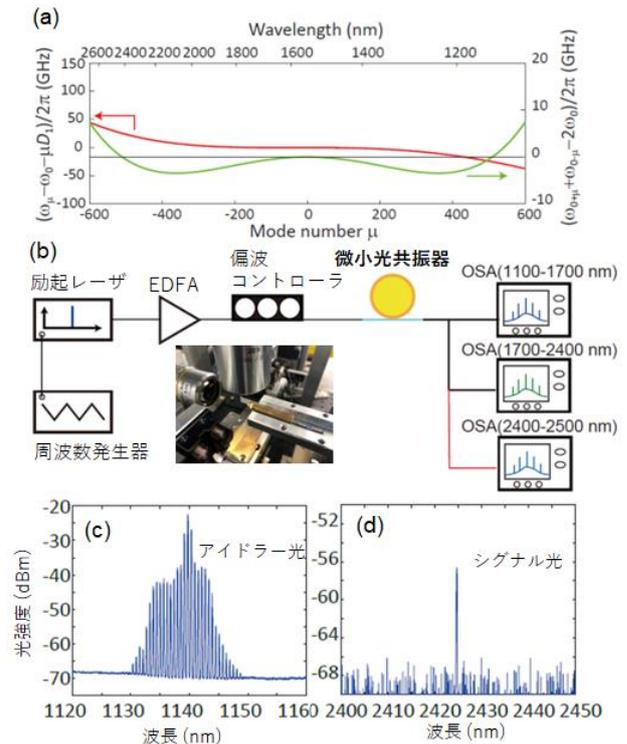


図 6 : (a) 図 5 で作製した微小光共振器の分散(左軸)と FWM 光発生に必要な位相整合条件(右軸). (b) OPO 発生のための実験セットアップ. (c-d) 1549.47 nm の光波長で励起した時に発生したアイドラー光とシグナル光.

6. MgF₂ 結晶 WGM 共振器による高繰り返し光パルス光源開発

出力が高速な光パルス列となる、ソリトンコムを発生させるためには、励起光の波長を共振器の共振器モードの短波長側から長波長側に沿って波長掃引する必要がある。出力光コムの強度をモニタしながら、励起レーザを 3 MHz/ms の速度で掃引した結果が図 7(a)である。掃引中に生成する光コムの様子を捉えたのが図 7(b)である。励起光が共振波長に十分近づくと、FWM が効率的に発生し、光コムが発生する。最初は Turing パターンコムと呼ばれる状態からスタートし、変調不安定 (Modulation instability: MI) コムと呼ばれる状態をとる。励起レーザの波長が共振波長に対して実効的に長波長側となった瞬間に、図 7(a)に示すように透過率がステップ状に低下する。その時に得られるのが、図 8 に示すソリトンコムである。ソリトンコムでは、スペクトルの各縦モードの位相がロックして、FSR に一致する高速な光パルス列が出力として得られる。また、ソリトンコムは極めて安定しており、長時間出力が維持される。図 8 の挿入図に、スペクトルの長時間安定性の様子を示した。

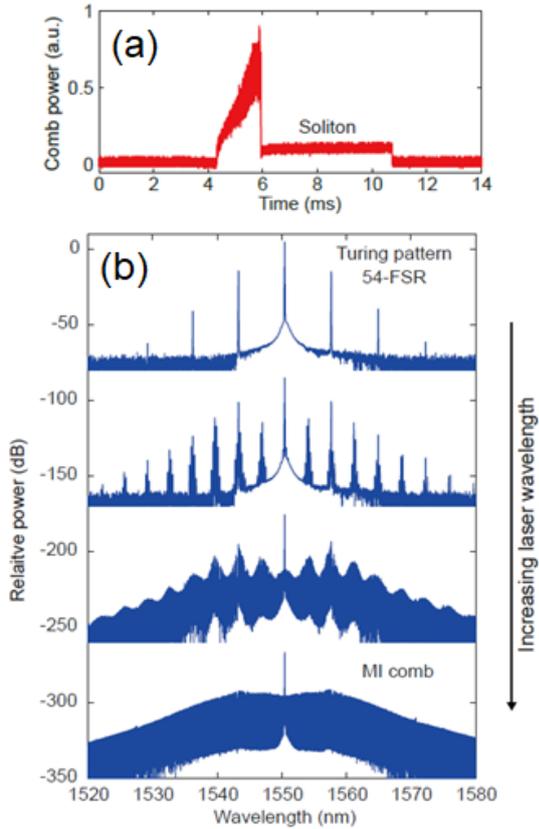


図 7 : (a) 励起波長を短波長から長波長に沿って 3 MHz/ms の速度で掃引した時の出力光コム強度の変化。(b) 掃引中に発生する光周波数コムの様子. 詳細は本文に解説している.

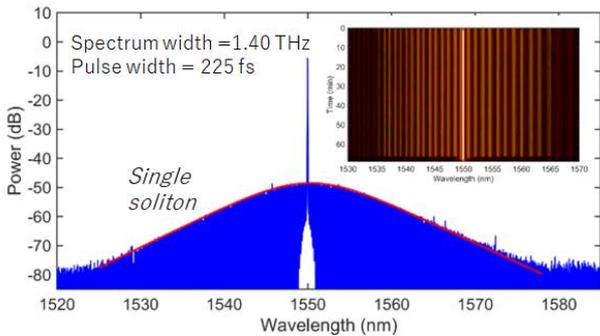


図 8 : ソリトンコムの光スペクトル. 挿入図はスペクトルの長期安定性.

9.6 GHz の FSR を有する微小光共振器を用いて, ソリトンコムを生成し, その出力を高速なフォトダイオードで測定した結果が図 9 である. 時間波形から, FSR に一致する 9.6 GHz の繰り返しの光パルスが得られていることがわかる.

本研究で最も重要な目標であった, 微小光共振器を用いた光周波数コムにおいて, 高速な繰り返し光パルスを得ることに成功した. この光源をレーザ加工にもちいることで, 先に挙げた多くの課題を解決できるものと期待される.

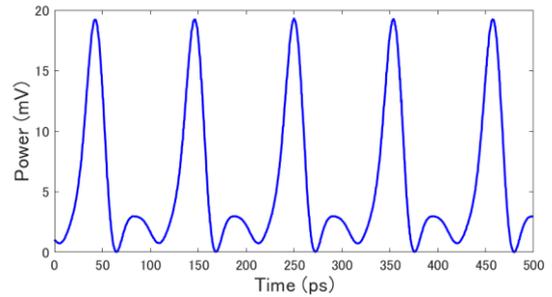


図 9 : 9.6 GHz の自由スペクトル領域を持つ MgF_2 微小光共振器を用いて生成した高速繰り返し光パルス列

7. エルビウムドープ微小光共振器の作製とレーザ発振の実現

図 2 の右側の写真で示した, エルビウム(Er)ドープ微小光共振器を用いた自励発振を目指した取り組みについて報告する. 前節で紹介した光周波数コムは連続光を入力し, 連続的に FWM を生じさせて光コムを得る. つまり, 外部入力光が必要となる. それを解決するためには, 自励発振しつつモードロックパルスを得るシステムが必要である. そのためには, まずは利得を有する微小光共振器を作製しなくてはならず, 我々は Er を SiO_2 にドープしつつ WGM 微小光共振器を作製することとした.

そのためには, 良質な Er ドープ SiO_2 膜を Si ウェハ上に形成する必要がある. 我々は TEOS と呼ばれるゾルゲルプロセスを用いて膜を形成することにした. 膜の形成方法を図 10 の上段に示す.

Si ウェハ上に形成した膜は, 図 10 の下段に示すように, 通常のシリカトロイド微小光共振器と同じく, レーザリフトプロセスを用いて共振器を形成した. 得られる共振器の表面はなめらかであり, 低いしきい値でレーザ発振が得られることが期待される.

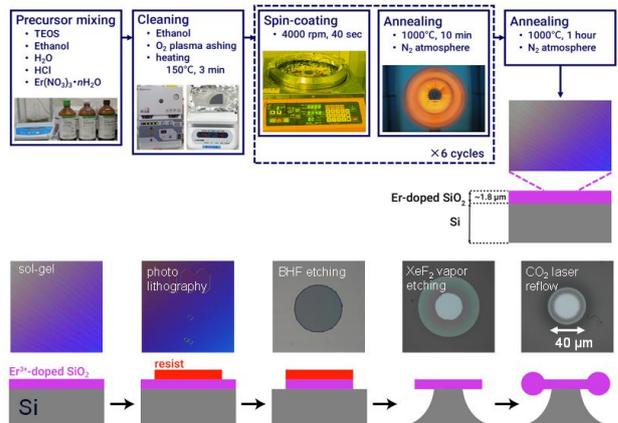


図 10 : (上段) ゾルゲルプロセス. (下段) 作製したゾルゲル膜をレーザリフトプロセスによってトロイド微小光共振器を作製

そこで、1480 nm の波長を励起光として用いて、共振器を励起し、レーザ発振を試みた。その結果を図 11 に示す。励起光 5 μW にて明確な発振しきい値が観測され、レーザ発振が実現できていることが確認できた。これは世界最小クラスの Er ドープレーザである。

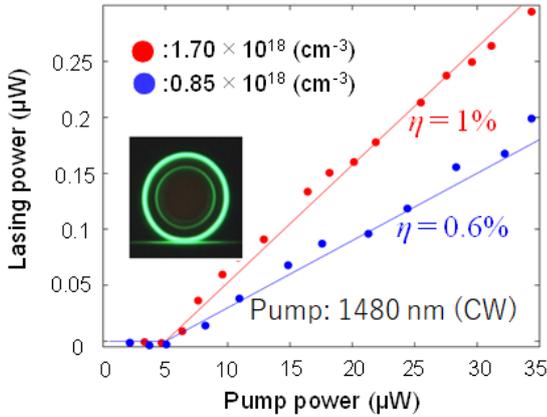


図 1 1 : 1480 nm の光励起で 1550 nm のレーザ発振を微小光共振器で実現

パルスレーザを実現するためには、可飽和吸収体を付与する必要がある。可飽和吸収体として、Er ドープモードロックファイバリングレーザで広く実績のある、カーボンナノチューブ(CNT)を選択した。はじめに、CNT が可飽和吸収応答を示すことを確認する必要がある。そこで、微小光共振器に CNT を修飾し、Q 値の変化から可飽和吸収を確認することとした。すなわち、吸収が低下すれば Q 値が向上するはずであり、それが入力光強度にどのように依存するかを調べれば良い。その結果を図 12 に示す。Q 値測定から得られた吸収係数を算出すると、入力光パワーを向上させるにつれて、吸収が低下していることが確認できた。これは可飽和吸収の存在を直接示す結果である。

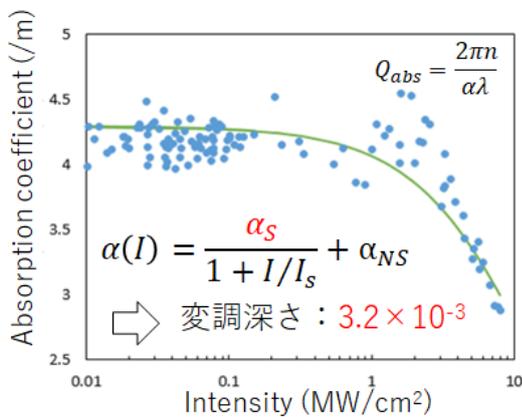


図 1 2 CNT 修飾トロイド微小光共振器の入力光強度に対する Q 値測定から得られた吸収係数

Er 利得と CNT の可飽和吸収の両方を確認できたので、次の課題はモードロックレーザを実現するパラメータの存在を確認するところにある。繰り返し光パルスが極めて高く、共振器の Q 値が非常に高いため、従来とのリング共振器とは全く異なる領域を扱うので、計算によるパラメータの見積もりが必要不可欠である。

その結果を図 13 に示す。実験で実現しうる Q 値である Q 値 10^7 と 10^8 それぞれにおいて、利得と可飽和吸収の変調深さをパラメータとしてモードロックに必要な条件を求めた。図 11 の結果から、共振器を 1 周する毎の利得はおおよそ 10^{-3} 程度であることがわかっている。これは Er の利得断面積から見積もられる値ともよく一致している。つまり、この利得においてモードロックを得るためには Q 値が 10^7 の共振器では難しく、 10^8 の共振器が必要であることがわかった。なお、この条件は繰り返し周波数を 100 GHz の場合であり、繰り返し周波数を 10 GHz 程度まで下げる大きさの共振器を用いることで Q 値 10^7 の共振器でもモードロック出力が得られることがわかった。詳細は研究論文発表したものでそちらを参照頂きたい⁶⁾。

この知見は、レーザ開発において必要不可欠であり、我々は世界最小級の Er ドープモードロックレーザの実現に向けて歩みを進めることができた。

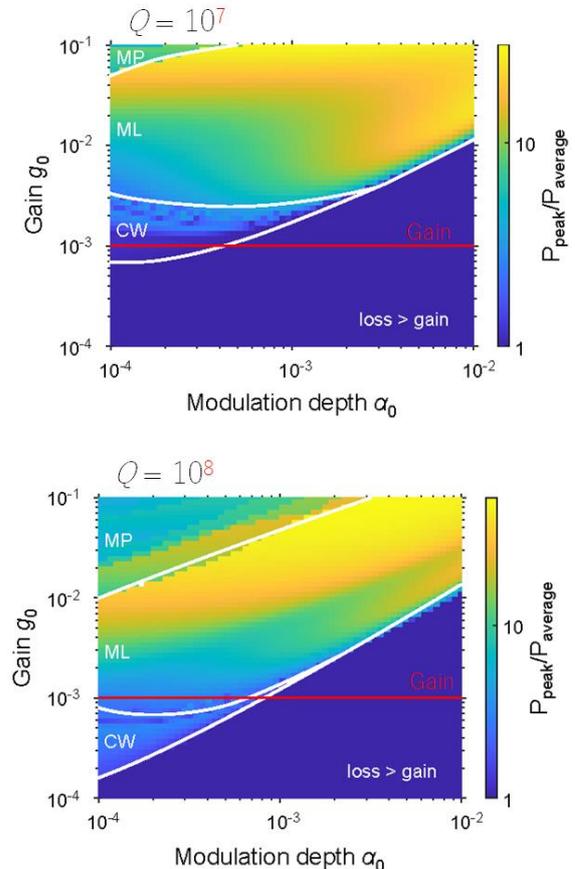


図 1 3 Q 値 10^7 及び 10^8 の共振器におけるモードロック発振の条件。横軸は変調深さ、縦軸は 1 周あたりの利得。

8. ソリトン結晶の実現

これまで得られた結果より、共振器に必要な Q 値の条件を緩和しつつモードロックレーザの条件を得るためには、共振器サイズをある程度大きくしなくてはならないことが示唆された。すなわち、我々は共振器を GHz の繰り返し程度になるサイズを選択しつつ、さらなる高繰り返し化を目指す必要がある。

そこで有望な技術となるのが、ソリトン結晶の生成である。ソリトン結晶とは、リング共振器の中に空間的に（時間的に）等間隔な光パルスが生成された状態のことを指す。我々はこのソリトン結晶生成の物理について解明を試みた⁷⁾。

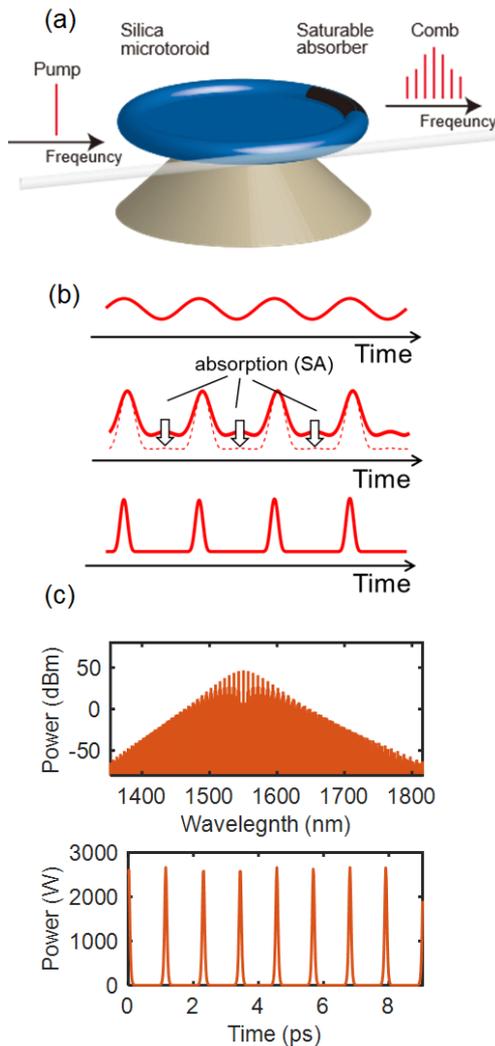


図 14 (a)ソリトン結晶を生成するための系。可飽和吸収体を付与した微小光共振器を用いて実現する。(b) 可飽和吸収を用いてソリトン結晶を実現する説明図。(c) 計算されたソリトン結晶。超高繰り返し光パルスが得られている。

今回想定している系を図 14(a)に示す。ソリトン結晶を生成するためには、等間隔な光パルスを多数共振器の中に生成する必要がある。そのために、我々は図 12 でも用い

た可飽和吸収技術を活用することとした。微小光共振器において光周波数コムを生成する際は、図 7(b)で示したように、Turing pattern コムと呼ばれる状態からスタートする。Turing pattern コムは時間領域では正弦波変調となっているので、そのピークと谷の間隔は完全に等間隔である。通常はそこからカオス状態を経由してソリトン状態へと達するが、可飽和吸収を付与することで、カオス状態に陥るのを妨げる事ができる。カオス状態を経由せずに Turing pattern コムから直接ソリトンコムの状態へと遷移させることで、等間隔なソリトンパルスを共振器に得ることができる。以上の説明を図示したのが図 13(b)であり、これがすなわちソリトン結晶を得るためのアイディとなる。

非線形シュレディンガー方程式を用いて、図 13(a)のシステムを計算機上で実現し、その応答を計算したのが図 13(c)である。ソリトン結晶が実現でき、等間隔な超高繰り返し光パルスが得られていることが示された。この手法によるソリトン結晶生成は従来にはない、全く新しいものである。

以上の成果は、利得が比較的高く得られる少しサイズが大きな微小光共振器を用いても、超高繰り返し光パルスが得られることを示しており、高繰り返しパルス光源の実現手法の多様化を進めるものである。

9. まとめ

本研究における主な成果をまとめると、 MgF_2 微小光共振器の作製において超精密機械加工を組み合わせることで、従来は広い透過スペクトルを有する MgF_2 では実現できなかった、分散設計された高 Q 値微小光共振器を作製することに成功した。そして、 MgF_2 微小光共振器を用いて、10 GHz での繰り返し光パルスを光周波数コムで実現した。

また、自励発振に向けて CNT を付与した Er ドープシリカトロイド微小光共振器の検討を進め、世界最小級の Er ドープ CW レーザを実現するとともに、超高繰り返しモードロックレーザ実現に向けた条件を明らかにした。

超高繰り返し光パルスの実現によって、レーザ加工機のスループット向上や、アブレーション冷却などの新たな物理現象の解明に貢献できると期待される。

謝辞

本研究を進めるに当たり、多くの関係者の方々に感謝申し上げます。特に超精密加工において柿沼康弘教授（慶應義塾大学理工学部システムデザイン工学科）には重ねて感謝申し上げます。研究室のメンバー、特に藤井瞬博士（現理化学研究所）には実験や理論の多くの部分を進めていただきました。ここに御礼申し上げます。

参考文献

- 1) C. Kerse, *et al.*, "Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses," *Nature* **537**, 84 (2016).
- 2) S. Fujii and T. Tanabe, "Dispersion engineering and measurement of whispering gallery mode microresonator for Kerr frequency comb generation," *Nanophotonics* **9**, 1087 (2020).
- 3) S. Fujii, Y. Hayama, K. Imamura, H. Kumazaki, Y. Kakinuma, and T. Tanabe, "All-precision-machining fabrication of ultrahigh-Q crystalline optical microresonators," *Optica* **7**, 694 (2020).
- 4) Y. Hayama, S. Fujii, T. Tanabe, and Y. Kakinuma, "Theoretical approach on the critical depth of cut of single crystal MgF₂ and application to a microcavity," *Precision Engineering* **73**, 234 (2022).
- 5) S. Fujii, S. Tanaka, M. Fuchida, H. Amano, Y. Hayama, R. Suzuki, Y. Kakinuma, and T. Tanabe, "Octave-wide phase-matched four-wave mixing in dispersion engineered crystalline microresonators," *Opt. Lett.* **44**, 3146 (2019).
- 6) T. S. L. P. Suzuki, A. Nakashima, K. Nagashima, R. Ishida, R. Imamura, S. Fujii, S. Y. Set, S. Yamashita, and T. Tanabe, "Design of a passively mode-locking whispering-gallery-mode microlaser," *J. Opt. Soc. Amer. B* **38**, 3172 (2021).
- 7) A. Nakashima, S. Fujii, R. Imamura, K. Nagashima, and T. Tanabe, "Deterministic generation of a perfect soliton crystal with a saturable absorber," *Opt. Lett.* **47**, 1458 (2022)