高効率なフェムト秒レーザプロセッシングに向けた新しいバーストパルス発生手法の開拓

京都大学　化学研究所
助教　岡﨑　大樹
（2023 年度 奨励研究助成（若手研究者枠） AF-2023233-C2）

キーワード：レーザー，波形制御

１．研究の目的と背景

フェムト秒レーザーは，金属，半導体，樹脂などの精密加工において，高い空間分解能と低い熱影響を両立できる光源として広く利用されている [1-4]．フェムト秒パルスによるレーザプロセッシングでは，光と物質の相互作用が熱拡散よりも短い時間スケールで進行するため，熱的損傷を抑制した加工が可能となる [1, 2]．一方で，単一パルスを十分な時間間隔で照射する通常の加工方式では，平均投入エネルギーを高めにくく，加工効率の向上に限界がある．

この課題を解決する手法として，近年，バーストモードフェムト秒レーザーが注目されている [5-8]．バーストモードでは，数ピコ秒から数百ピコ秒程度の短い時間内に複数のフェムト秒パルスを連続して照射する（図 1）．これにより，過度なプラズマ遮蔽や熱蓄積を抑制しながら，短時間に大きなエネルギーを材料へ供給できる [5-7]．したがって，サブパルス数，パルス間隔，サブパルス間の強度比を制御できるバーストパルス光源は，高効率かつ高品質なフェムト秒レーザプロセッシングを実現するうえで重要な基盤技術である [6-8]．

従来のバーストパルス発生では，主に外部共振器や再生増幅器を用いて，パルスを時間的に分岐・蓄積する手法が用いられてきた [6, 7]．この方法は実用的であり，一部は産業用レーザーとして成熟している．しかし，発生できるバーストパルス列の自由度は共振器長や光スイッチング条件によって制約され，サブパルス数，強度比，パルス間隔を自在に制御することは容易ではない．そのため，時間波形をより自由に設計できる新しいバーストパルス生成原理が求められている．



図 1　フェムト秒バーストパルスの模式図．
数ピコ秒間隔で，フェムト秒パルスが多数存在し，
それがレーザーの繰返し周波数で繰り返される．

本研究で着目したのは，周波数領域の等間隔なスペクトル構造と，時間領域のバーストパルス構造の対応関係である．広帯域フェムト秒パルスのスペクトル中に等間隔な狭線幅ピーク構造を形成すると，フーリエ変換の関係により，時間領域では周期的なサブパルス列，すなわちバーストパルス列が生じる．この見方に立つと，バーストパルス発生は，時間領域でパルスを光学的に分岐する問題ではなく，周波数領域の振幅・位相構造を制御する問題として捉え直すことができる（図 2）．

以上から，本研究の目的は，高効率なフェムト秒レーザプロセッシングに資する新しいバーストパルス発生手法の基盤を構築することである．特に，等間隔な狭線幅スペクトルピーク構造を形成することで，時間領域においてサブパルス列を生成する手法に着目した．周波数領域で制御された櫛状スペクトル構造は，時間領域ではパルス間隔とサブパルス数が制御されたバースト波形に対応する．したがって，本研究は，スペクトル制御を通じた時間波形制御という観点から，従来の外部共振器型バースト発生法とは異なる原理の光源技術を開拓するものである．

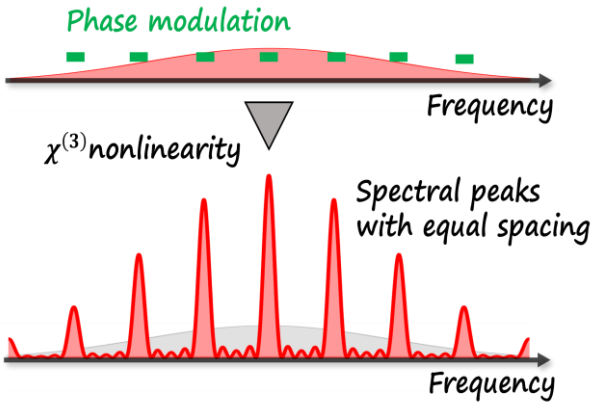


図 2　等間隔スペクトルピーク形成の概念図．
数テラヘルツ間隔で，等間隔スペクトルピークを形成し，
それらの位相を揃えると，時間領域では図 1 のような
バーストパルスが得られる．
これは，広帯域モード同期レーザーに狭線幅変調を与え，
その後，自己位相変調を与えることで実現できる．

２．研究の方法

当初計画では，金属のレーザー加工に広く用いられる波長 1 μm 帯のイッテルビウムファイバーレーザーを用い，4f 光学系による等間隔な周波数位相変調と，高非線形光ファイバや YAG 結晶中の 3 次非線形光学効果を組み合わせることで，時間領域においてバーストパルス列を発生させることを計画した．この方式では，周波数位相構造に鋭敏に応答する 3 次の光パラメトリック過程により，変調を受けた周波数成分へ選択的なエネルギー流入を生じさせる [9-12]．その結果，等間隔なスペクトルピーク構造を形成し，時間領域でピコ秒間隔のバーストパルス列を得ることを狙った．

しかし，研究期間中に利用可能なフェムト秒レーザー光源装置の状況が変化したため，新しく所属研究室で整備を進めていた波長 4 μm 帯の高強度超短パルスレーザー装置から得られる中赤外高強度パルスを用いた非線形光学実験を実施した．中赤外超短パルスレーザーは，分子振動に由来する波長選択的な吸収を利用できるため，ポリマーを含む材料加工においても重要な波長域である．

一方，波長 4 μm 帯では，波長 1 μm 帯と比較して，低損失で高非線形性を有する光ファイバー技術が限られる．また，光変調器も未成熟な波長域である．そのため，波長 4 μm 帯では，導波路型ではなく自由空間型の非線形光変調を用いる必要が生じた．また，線形な振幅位相変調に関しても，変調デバイスを必要としない手法を新規に開拓する必要性が生じた．

自由空間型では，高エネルギーパルスを比較的容易に利用できる一方で，非線形材料の透過性，非線形屈折率，損傷耐性がスペクトル構造形成を大きく左右する [13-16]．

以上の背景から，本研究では，数値計算により波長 1 μm 帯におけるスペクトルピーク形成，ひいては，バーストパルス生成条件を検討した．実験では，波長 4 μm 帯の自由空間系でバーストパルス生成（スペクトルピーク構造形成）を実現するための基盤として，中赤外非線形光学材料の評価を行った．ZnS，ZnSe，As_2S_3，Ge，Si，YAG，TiO_2 などの中赤外透過材料に対して，4 μm 帯パルス入射時の非線形スペクトル変調と光学損傷耐性を評価した．

本現象は波長に依らず，時間領域ではバーストパルス形成に直結するため，本研究が与える設計指針は，将来的に波長 1 μm や波長 4 μm に限らず，様々なレーザー波長におけるバーストパルス生成に応用できる．

２・１　数値計算の概要

本研究では，まず，等間隔スペクトルピーク形成と時間領域バーストパルス形成の関係を数値計算により検討した．フェムト秒パルスの周波数スペクトルに等間隔な狭線幅ピーク構造が存在すると，フーリエ変換の関係により，時間波形にはピーク間隔に対応した周期的なパルス列が現れる [9, 10]．したがって，所望のサブパルス間隔とパルス数を得るためには，スペクトルピークの間隔，線幅，強度比，および背景スペクトルとのコントラストを適切に制御する必要がある．

数値計算は，GPU 計算ライブラリ CuPy を用いて，スプリットステップフーリエ法に基づく 1 次元の非線形パルス伝搬計算を行った．エタロン型フィルタの透過・反射応答を与えた後，瞬時強度に比例する自己位相変調の非線形位相を付加した．材料中を伝搬する際の時間波形，スペクトル強度およびピーク成分の増減率を算出し，狭線幅スペクトルピークが成長する条件と伝搬長を評価した．

２・２　実験の概要

実験では，波長 4 μm 帯の高強度超短パルス光源を用いた．光源は，Yb:CaF_2 レーザーを基盤とし，KTA を用いた光パラメトリック増幅と Fe:ZnSe 増幅を組み合わせた中赤外パルス発生系である（図 3）．この光源により，200 fs 程度のパルス幅をもつ波長 4 μm 帯のパルスを発生させ，数十 μJ 級および mJ 級のエネルギー領域で非線形光学実験を行った．

本研究では自由空間型の非線形光学配置を採用した．具体的には，中赤外透過材料を自由空間中に配置し，集光条件，試料長，入射エネルギーを変化させながら，出射スペクトルの変化を測定した．評価対象材料として，ZnS，ZnSe，As_2S_3，Ge，Si，YAG，TiO_2 などを用いた．これらの材料は，中赤外域での透過性，屈折率，分散，非線形屈折率，およびバンドギャップが互いに異なるため，波長 4 μm 帯の自由空間非線形光変調に適した材料は非自明である．特に，狭バンドギャップ材料では高い非線形屈折率が期待される一方，多光子吸収や熱的効果に起因する損傷が懸念される．これに対して，YAG や TiO_2 のような比較的広いバンドギャップをもつ材料では，損傷耐性を確保しながら非線形スペクトル変調を得られる可能性がある [14-16]．

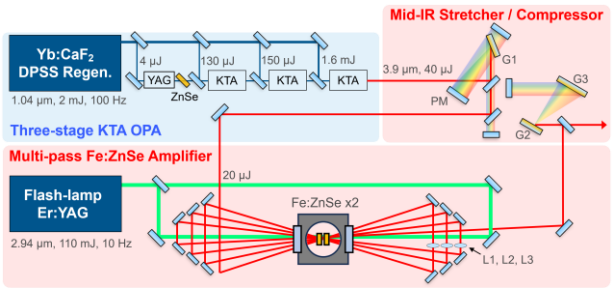


図 3　構築した中赤外高強度レーザー装置の模式図．Yb:CaF_2 再生増幅器から得られるパルスを，KTA を用いた光パラメトリック増幅器によって波長 4 μm 帯に変換し，Fe:ZnSe 結晶を用いてマルチパス光増幅を行っている．

３．研究成果

本研究では，等間隔スペクトルピーク形成によるバーストパルス発生を目指し，波長 1 μm 帯の光源を想定した非

線形光学系における基礎的な数値計算を行った．これにより，バーストパルス形成に必要なスペクトル構造を得るためのパラメータ選択に関する知見が得られた．

実験は当初想定と異なり，波長 4 μm 帯で上記と類似の系を構成すべく，中赤外窓材料の損傷耐性評価を含めた非線形光学変調に関する実験を実施し，当波長帯でスペクトルピーク形成実験を行うための材料探索を行った．

3・1　数値計算

数値計算では，スペクトルピーク構造の形成に必要とされる入射パルスのパラメータ，狭線幅変調のパラメータ，非線形屈折率と分散のパラメータを確認した．特に，図 4 に示すように，狭線幅吸収構造を事前に付与したパルスが非線形媒質中を伝搬する場合，吸収構造の線幅がレーザーのスペクトル帯域に比べて十分に狭ければ，形成されるスペクトルピーク強度が大きくは変化しないと分かる．この結果は，スペクトルピーク形成においては，初期変調の線幅を厳密に制御する必要は小さく，分子ガス吸収線のような実験的に利用可能な狭線幅構造を種として用いればよいことを示している．

さらに，波長 1.03 μm，パルス幅 0.40 ps，パルスエネルギー15 μJ の入射パルスに対し，エタロンによる周期的なスペクトル変調と YAG 中の自己位相変調を組み合わせた多重パス計算を行った．この条件では，0.5 mm の YAG 伝搬と分散位相・エタロン応答の付与を繰り返すことで，周波数領域の周期構造が時間領域のサブパルス列へ変換され，およそピコ秒間隔のバーストパルス構造が形成されることを確認した．特に，図 5 に示すように，1，5，10，15，20，25，30，35 pass 後の時間波形とスペクトルを比較することで，通過回数の増加に伴ってスペクトル構造が発達し，時間領域に明瞭なサブパルス列が現れる．単純なシングルパス吸収で生じるサブパルス列と比較して，後ろ側に存在するサブパルスへエネルギーが流れ込み，サブパルス列の強度均一性が向上している．

この結果は，等間隔スペクトルピーク形成を利用して，バーストパルス列を生成できる可能性を示すものである．また，スペクトル構造を調整することで，サブパルス間隔やパルス列の形状を設計できる見通しが得られた．この結果は，波長 4 μm 帯において，亜酸化窒素ガスなどが有する狭線幅吸収を利用して初期スペクトル変調を与え，その後の非線形伝搬によってスペクトルピーク構造を増強する方針が有効であることを示している．

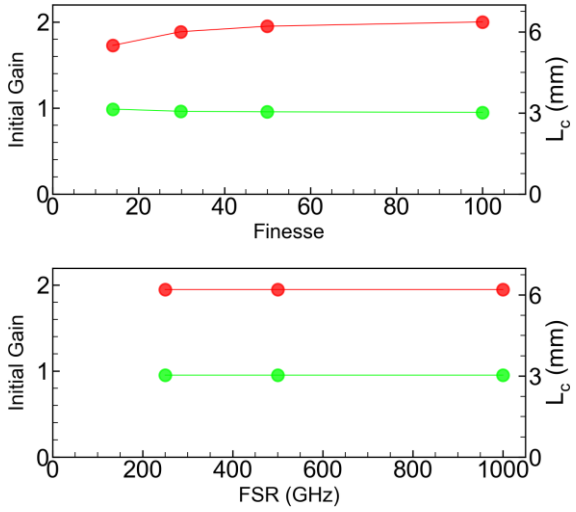


図 4　エタロン型フィルタにおけるフィネス（上段）・FSR（下段）を変えた際のスペクトルピーク振幅の依存性（赤）と必要な伝搬長（緑）．

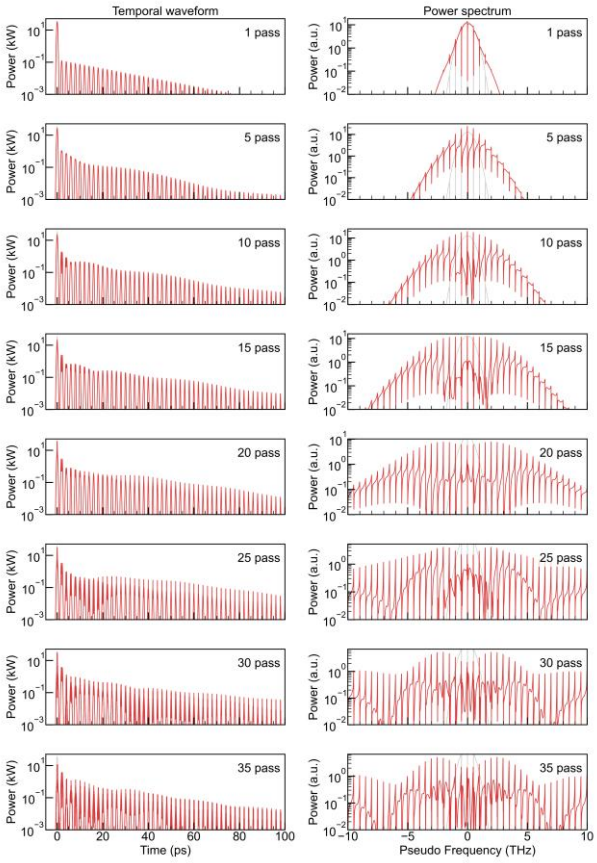


図 5　エタロンによるスペクトル変調と YAG 中の自己位相変調を組合せた多重パス計算の結果．
単一パスの振幅変調（光吸収）においても時間ドメインでバーストパルスは形成されるが，それと比較して，パス数が増えるにつれて，サブパルスのコントラストが向上していく（平坦化していく）様子が確認できる．

3・2　実験

実験では，Yb:CaF_2–KTA–Fe:ZnSe からなる波長 4 μm 帯レーザー装置の高エネルギー化を進め，非線形光学材料の評価に十分な強度をもつ 5 mJ，250 fs 級の中赤外パルス光源を整備した．当該光源は，Fe:ZnSe をレーザー増幅媒質として用いる増幅器として，世界最高クラスのレーザーピ

ーク強度に到達した．これにより，本研究はバーストパルス生成の基盤構築に加えて，高強度中赤外フェムト秒光源開発としても意義のある成果を得た．

中赤外非線形材料の評価では，材料ごとの非線形応答と損傷耐性の差が明確になった．ZnS，ZnSe，As_2S_3，Ge，Si などの狭バンドギャップ材料では，高い非線形応答が期待されたが，実際には，レーザー照射時の光学損傷が実用上の制約となることが分かった（図 6）．一方，YAG および TiO_2 では，図 7 に示すように，明瞭な光学損傷を伴わずに非線形スペクトル拡大を観測した．特に，YAG では 10 mm 程度の伝搬長を要したのに対し，TiO_2 では 0.5 mm 厚の短い伝搬長で十分なスペクトル拡大が得られた．この結果は，波長 4 μm 帯における自由空間での非線形光変調において，TiO_2 が有望な材料であることを示している．

以上の結果から，本研究の実験的成果は次の 2 点にまとめられる．第一に，当初の波長 1 μm 帯ファイバー系から波長 4 μm 帯自由空間系へ実験手段を変更する必要性が生じたが，等間隔スペクトルピーク形成に必要な高強度中赤外パルス光源を整備できた．第二に，中赤外高強度パルスを用いた非線形光変調で使用できる材料選択を進め，TiO_2 が短い伝搬長で有効なスペクトル拡大を示し，今後のスペクトルピーク形成および時間領域バーストパルス生成に向けた有望材料であることを明らかにした．

一方で，当初目標としていた波長 1 μm 帯におけるバーストパルス列の発生は，シミュレーションにより必要パラメータの算出はできたものの，光源装置の都合上，実験的実現には至らなかった．また，波長 4 μm 帯の自由空間系においても，狭線幅吸収構造を付与したパルスを TiO_2 結晶へ入射し，最終的なスペクトルピーク形成および時間波形を直接観測する段階までは完了していない．主な理由は，狭線幅スペクトル構造を評価するための高分解能な中赤外分光計測系の構築に時間を要しているためである．



図 6　As_2S_3 上で観測された光学損傷．
ZnSe，As_2S_3，Ge，Si などの狭バンドギャップ材料では，自己位相変調を観測できる光強度で光学損傷が生じた．

4．まとめと今後の展望

本研究では，高効率なフェムト秒レーザプロセッシングに資する新しいバーストパルス発生手法として，等間隔なスペクトルピーク構造を利用した時間領域における波形制御法を検討した．数値計算では，波長 1.03 μm，パルス幅 0.40 ps，パルスエネルギー15 μJ の入射パルスに対し，エタロンによる周期的スペクトル変調と YAG 中の自己位相変調を組み合わせた多重パス伝搬を解析した．その結果，通過回数の増加に伴ってスペクトル構造が発達し，時間領域においておよそピコ秒間隔のバーストパルス構造が形成されることを確認した．これは，従来的な外部共振器による手法とは全く独立した手法で，周波数領域の構造制御によってバーストパルス列を生成できる可能性を示す成果である．

実験では，当初想定していた波長 1 μm 帯ファイバー系から，波長 4 μm 帯高強度超短パルスを用いた自由空間型非線形光学系へ研究手段を変更する必要性が生じた．この過程で，Yb:CaF_2–KTA–Fe:ZnSe を用いた中赤外パルス光源を整備し，ZnS，ZnSe，As_2S_3，Ge，Si，YAG，TiO_2 などの中赤外透過材料について，非線形スペクトル変調と光学損傷耐性を評価した．その結果，狭バンドギャップ材料では光学損傷が課題となる一方，YAG および TiO_2 では損傷を伴わずにスペクトル拡大が得られ，特に TiO_2 が短い伝搬長で有効な非線形材料であることを明らかにした．

以上より，本研究では，実験的なバーストパルス列の直接発生には至らなかったものの，数値計算により本手法の有効性を示すとともに，波長 4 μm 帯での実証に向けた材料選択と計測上の課題を明確化した．今後は，亜酸化窒素ガスなどの狭線幅吸収を用いて波長 4 μm 帯パルスに周期的スペクトル変調を付与し，TiO_2 結晶中の非線形伝搬によるスペクトルピーク形成を実証する．

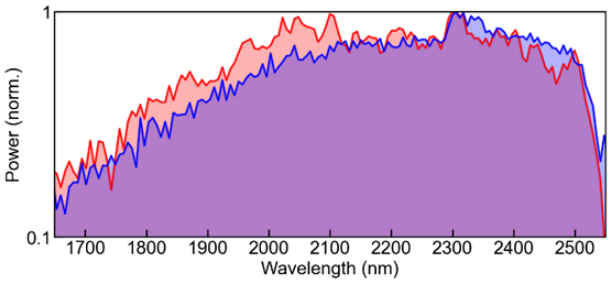


図 7　自己位相変調によって広がった中赤外レーザースペクトル（赤：TiO_2 青：YAG）．
中赤外波長では分光器の感度が低いため，近赤外域の短波長端を評価した．

参考文献

1）　B. N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von Alvensleben, and A. Tünnermann, “Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids,” *Applied Physics A*, Vol. 63, pp. 109–115, 1996.

2）　K. Sugioka and Y. Cheng, “Ultrafast lasers—reliable tools for advanced materials processing,” *Light: Science & Applications,* Vol. 3, e149, 2014.

3）　R. R. Gattass and E. Mazur, “Femtosecond laser

micromachining in transparent materials," *Nature Photonics,* Vol. 2, pp. 219–225, 2008.

4) K. C. Phillips, H. H. Gandhi, E. Mazur, and S. K. Sundaram, "Ultrafast laser processing of materials: a review," *Advances in Optics and Photonics,* Vol. 7, pp. 684–712, 2015.

5) C. Kerse, H. Kalaycıoğlu, P. Elahi, B. Çetin, D. K. Kesim, Ö. Akçaalan, S. Yavaş, M. D. Aşık, B. Öktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, and F. Ö. Ilday, "Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses," *Nature*, Vol. 537, pp. 84–88, 2016.

6) K. Sugioka, "Will GHz burst mode create a new path to femtosecond laser processing?" *International Journal of Extreme Manufacturing*, Vol. 3, 043001, 2021.

7) D. J. Förster, B. Jäggi, A. Michalowski, and B. Neuenschwander, "Review on experimental and theoretical investigations of ultra-short pulsed laser ablation of metals with burst pulses," *Materials*, Vol. 14, 3331, 2021.

8) K. Obata, F. Caballero-Lucas, and K. Sugioka, "Material processing at GHz burst mode by femtosecond laser ablation," *Journal of Laser Micro/Nanoengineering*, Vol. 16, pp. 19–23, 2021.

9) A. Präkelt, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, A. Assion, and T. Baumert, "Filling a spectral hole via self-phase modulation," *Applied Physics Letters*, Vol. 87, 121113, 2005.

10) N. Nishizawa and M. Yamanaka, "Periodical spectral peaking on optical pulses," *Optica*, Vol. 7, pp. 1089–1092, 2020.

11) N. Nishizawa and M. Yamanaka, "Characteristics of spectral peaking in optical fibers," *Optics Express*, Vol. 29, pp. 42876–42886, 2021.

12) D. Okazaki, W. Song, I. Morichika, and S. Ashihara, "Mode-locked laser oscillation with spectral peaks at molecular rovibrational transition lines," *Optics Letters*, Vol. 47, pp. 6077–6080, 2022.

13) S. Ashihara and Y. Kawahara, "Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in GaAs," *Optics Letters*, Vol. 34, pp. 3839–3841, 2009.

14) F. Silva, D. R. Austin, A. Thai, M. Baudisch, M. Hemmer, D. Faccio, A. Couairon, and J. Biegert, "Multi-octave supercontinuum generation from mid-infrared filamentation in a bulk crystal," *Nature Communications*, Vol. 3, 807, 2012.

15) P. Steinleitner, N. Nagl, M. Kowalczyk, J. Zhang, V. Pervak, C. Hofer, A. Hudzikowski, J. Sotor, A. Weigel, F. Krausz, and K. F. Mak, "Single-cycle infrared waveform control," *Nature Photonics*, Vol. 16, pp. 512–518, 2022.

16) M. Kowalczyk, N. Nagl, P. Steinleitner, N. Karpowicz, V. Pervak, A. Głuszek, A. Hudzikowski, F. Krausz, K. F. Mak, and A. Weigel, "Ultra-CEP-stable single-cycle pulses at 2.2 μm," *Optica*, Vol. 10, pp. 801–811, 2023.