

氏 名 齊川 次郎

学位（専攻分野） 博士（理学）

学位記番号 総研大乙第 137 号

学位授与の日付 平成 17 年 3 月 24 日

学位授与の要件 学位規則第 6 条第 2 項該当

学位論文題目 高出力超短パルス Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザーに関する研究

論文審査員	主査	教授	岡本 裕巳
		助教授	平等 拓範
		教授	大森 賢治
		助教授	菱川 明栄
		教授	神成 文彦（慶應義塾大学）

## 論文内容の要旨

本論文は、高平均出力超短パルスレーザー発振器の実現を目指して、要素技術となるレーザー材料、高出力レーザー、パルス発生法に関して行った基礎的研究についてまとめたものである。特性として平均出力 100W (繰返し周波数 $\sim$ 100MHz) において数ピコ秒 $\sim$ サブピコ秒のパルス発生を想定しており、高尖頭出力のパルス光によるレーザー加工や非線形波長変換による赤外、可視、紫外といった波長領域光源の高出力化等、理化学分野から産業分野にわたる応用が期待される。本研究ではレーザー材料として Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザー材料を提案し、その分光およびレーザー特性の評価、また高平均出力化のための新励起方式「エッジ励起マイクロチップレーザー」及び「 $\chi^{(2)}$ カスケード二次非線形光学効果」を用いたモード同期方式等について検討を行った。

希土類添加固体レーザーは結晶中に添加した3価の希土類イオンにおける 4f<sup>n</sup> (n:電子数) 不完全殻内の電子配置変化による電子遷移に伴う発光を利用している。Yb<sup>3+</sup>イオン (4f<sup>13</sup>) は、近赤外 $\sim$ 近紫外領域において発光に関与する励起準位群が一つしか無いことから、高出力化時に問題となる励起準位吸収やアップコンバージョン、濃度消光等の損失を無視できる。このため励起準位が多い Nd<sup>3+</sup> (4f<sup>3</sup>) 添加固体レーザーのように上記の損失を考慮しなくて済み、さらに原子量子効率が 90%以上と高く、量子欠損に基づく発熱も低減されることから高出力レーザーとして適している。また、蛍光幅が約 10nm 程度以上と広いため波長可変レーザー、モード同期レーザーとしても有用であり、これらの特徴から Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザー材料を提案した。しかしながら、基底準位とレーザー下準位が同じ準位群に属し、レーザー光の再吸収損失を持つ準四準位系レーザーであるため、レーザー動作の解明が必要となる。

第二章では、まず超短パルスレーザーに適したレーザー媒質形状について検討を行い、高出力パルス伝搬に伴う自己位相変調効果による不安定性を抑えることを目的にマイクロチップ形状を提案した。マイクロチップレーザーは厚さ 1mm 未満と短く、ビーム径を広げ強度を低下出来るため自己位相変調量を抑えられる。次に広帯域で高効率にレーザー発振を行うために準四準位系レーザーの動作解析を詳細に行った。励起光及びレーザー光の全発光過程を考慮したレート方程式よりレーザー発振しきい値の定式化を行った。この結果、Yb<sup>3+</sup>添加濃度及び共振器損失の制御により蛍光幅を大幅に越える広帯域化が可能であることを見出した。また高平均出力化のために、熱伝導率が高い母材に Yb<sup>3+</sup>を添加したレーザー材料の探索及び開発を行い、分光測定からその適性を評価した。本研究では熱伝導率に優れた Yb<sup>3+</sup>添加 Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (Yb:YAG: 熱伝導率 10W/mK) 単結晶を主な研究対象とした。さらに熱伝導率はやや低下するが、発振波長の広帯域化を目指し新たに開発した Yb:Y<sub>3</sub>ScAl<sub>4</sub>O<sub>12</sub> セラミックス (熱伝導率: 8.5W/mK) では Yb:YAG よりも 1.5 倍広い蛍光幅を得ることに成功した。この Yb:Y<sub>3</sub>ScAl<sub>4</sub>O<sub>12</sub> セラミックスは、Yb:YAG と Yb:Y<sub>3</sub>ScAl<sub>4</sub>O<sub>12</sub> (YSAG) による混晶系 (ディスオーダー) 材料であり、結晶場を変化させることにより広帯域化を図っている。さらに近年研究を進めているセラミックス技術を導入することにより組成の均一性を高めており、超短パルスレーザー用材料開発において新たな方向性を示した。

第三章では、前章での検討をもとに端面励起 Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザーの諸特性を評価した。

### 1) Yb:YAG レーザー

前章での結果をもとに Yb:YAG レーザーの広帯域波長可変動作実験を行った。この結果、共振器損失及び添加濃度を制御することにより蛍光幅 (約 8.5nm) の 10 倍も広い波長可変性 (可変幅約 85nm) が得られることを実証し、それまで報告されていた波長可変幅を 2 倍広げること成功した。この波長可変幅の拡大により 50fs を切る超短パルス光発生の可能性を提示した。

### 2) Yb:Y<sub>3</sub>ScAl<sub>4</sub>O<sub>12</sub> セラミックレーザー

Yb:Y<sub>3</sub>ScAl<sub>4</sub>O<sub>12</sub> セラミックスにおいてレーザー発振の基礎特性を評価した。この結果、スロープ効率 72%、光-光変換効率 50%を越える高効率発振に Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> レーザー励起において成功した。波長可変特性では、同じ共振器構成で Yb:YAG を上回る広帯域波長可変動作に成功し、この材料が高平均出力超短パルスレーザー用材料として有用であることを見出した。

これらの実験結果より Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザーが高平均出力超短パルスレーザー材料として適していることを明らかにした。

第四章では、モード同期 Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザーの基礎評価と超短パルス Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザーの高平均出力化について検討した。

半導体可飽和吸収ミラーを用いたモード同期 Yb:Y<sub>3</sub>ScAl<sub>4</sub>O<sub>12</sub> セラミックレーザーで、フェムト秒パルス発生に成功した。セラミック材料は焼成によって得られる多結晶体であるため単結晶粒子同士の境界における散乱損失の低減が課題であるが、セラミックレーザー材料では最短のパルス幅である 280fs を出力 60mW、波長 1035.8nm で得ることに成功した。この結果は、高平均出力化が可能な Yb:YAG 単結晶の報告値 340fs を凌ぐ成果であり、超短パルスレーザーにおけるセラミックレーザー材料の可能性を実証した。

次に高平均出力化のために、側面（エッジ）励起マイクロチップレーザーを提案し、その動作解析を行った。高平均出力においては励起用 LD の増加、さらに励起に伴う熱発生によるレーザー媒質のレンズ効果、破壊が問題となる。本研究では、端面励起型に比べ励起構成が簡便になる特徴に加え励起に伴う熱分布の均一化が可能と考えられる側面（エッジ）励起マイクロチップレーザーを提案した。レーザー出力の動作解析および原理実証実験の結果から平均出力 100W を越えるマイクロチップレーザーの実現性を示した。

最後に高出力レーザー用モード同期法について検討を行った。レーザーの高出力化に伴い、短パルス発生のためには不要なノイズ成分を抑えるために高速で損傷しきい値が高い変調器が必要となる。半導体可飽和吸収ミラーは損傷しきい値が低く、変調の回復時間も数十ピコ秒と長い。一方、能動モード同期で使用される音響光学素子（石英等）は損傷しきい値は高いが、変調時間が長いため、高出力化に適したモード同期法が必要となる。本研究では高出力パルスレーザー用モード同期法としてカスケード二次非線形光学効果を用いた第二高調波発生型非線形ミラーを Yb<sup>3+</sup>添加固体レーザーに初めて適用した。この方法は非線形光学効果を用いているため、高速に変調が可能であり、可飽和吸収損失も無いことが特徴である。高出力動作のための指針を得るために数 W 励起での実験を行った。この結果、パルス幅 9 ピコ秒において変換効率 50%を越える高効率パルス発生に成功した。この結果からパルス幅の制限は非線形光学効果における位相整合許容幅により制限されていることが分かり、またパルスの高出力化による出力パルスの歪みが起きることが明らかとなった。非線形光学材料の形状および共振器構成の最適化により回避出来ることを示した。これらの結果から平均出力 100W のサブピコ秒パルス発生 Yb:YAG レーザーの設計指針を得た。

以上、平均出力 100W 以上でサブピコ秒パルスを発生する半導体レーザー励起高出力モード同期レーザー発振器の実現を目指し、レーザー材料、レーザー発振器、そしてモード同期方式といった要素技術に関して基礎的研究を行った。これらの結果から、Yb<sup>3+</sup>固体レーザーを用いて高出力超短パルス発生の実現性を示した。今後、高平均出力超短パルスモード同期レーザー発振器の開発が進めば、これらのレーザーを利用した応用分野の開拓、進展が期待できる。

## 論文審査結果の要旨

齋川次郎君の学位論文は、 $\text{Yb}^{3+}$ 添加固体材料による新しい半導体レーザー励起高出力モード同期レーザー発振器を中心テーマとし、 $\text{Yb}^{3+}$ 添加固体材料の分光およびレーザー特性の評価、高出力化のための新励起方式、モード同期方式などの要素技術に関する基礎的研究について述べた、全五章から構成されている。

第一章で序論が述べられた後、第二章では広帯域で高効率にレーザー発振させるために準四準位系レーザーの動作解析を詳細に行った。この結果、 $\text{Yb}^{3+}$ 添加濃度及び共振器損失の制御により発振波長を広帯域化出来ることを見出した。また、高出力超短パルスレーザーを目指したレーザー材料の探索及び開発を行い、分光測定からその適性を評価した。発振波長の広帯域化を目指し開発した  $\text{Yb}:\text{Y}_3\text{ScAl}_4\text{O}_{12}$  セラミックスでは、 $\text{Yb}:\text{YAG}$  よりも 1.5 倍広い蛍光幅が得られる事を明らかにした。

第三章では、前章をうけて端面励起  $\text{Yb}^{3+}$ 添加固体レーザーの諸特性を明らかにした。

1)  $\text{Yb}:\text{YAG}$  レーザー 端面励起構成における  $M^2$  因子を用いた準四準位レーザーの最適設計法の確立により半導体レーザー励起においてもスロープ効率 70%に達する高効率発振が室温下で得られることを実証した。波長可変動作では、共振器損失及び添加濃度を制御することにより 1024.1~1108.6nm に及ぶ広い連続波長可変性を得られることを明らかにした。これは 50fs を切るパルス発生の可能性を示唆するものである。

2)  $\text{Yb}:\text{Y}_3\text{ScAl}_4\text{O}_{12}$  セラミックレーザー 新たに開発した  $\text{Yb}:\text{Y}_3\text{ScAl}_4\text{O}_{12}$  セラミックスにおいてスロープ効率 72%、光-光変換効率 50%を越える高効率発振を  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$  レーザー励起において実証した。波長可変幅では、同じ共振器構成で  $\text{Yb}:\text{YAG}$  を凌ぎ、 $\text{Yb}:\text{Y}_3\text{ScAl}_4\text{O}_{12}$  セラミックスが超短パルスレーザー用材料として有用であることを見出した。

これらの結果より  $\text{Yb}^{3+}$ 添加固体材料が高出力超短パルスレーザー材料として適していることが明らかとなった。

第四章では、モード同期  $\text{Yb}:\text{Y}_3\text{ScAl}_4\text{O}_{12}$  セラミックレーザーの評価と超短パルス  $\text{Yb}^{3+}$ 添加固体レーザーの高出力化について検討した。半導体可飽和吸収ミラーを用いたモード同期  $\text{Yb}:\text{Y}_3\text{ScAl}_4\text{O}_{12}$  セラミックレーザーで、セラミックレーザー材料ではもちろんのこと  $\text{Yb}:$ ガーネット系としても最短のパルス幅である 280fs を出力 60mW、波長 1035.8nm で得ている。次に、高出力化のために、エッジ励起マイクロチップレーザーを提案し動作解析を行った。動作解析および原理実証実験の結果より 100W を越えるマイクロチップレーザーが実現できることを示した。また高出力パルスレーザー用モード同期法として、吸収損失が無く高速変調が可能な、第二高調波発生型非線形ミラーについて検討を行い、 $\text{Yb}^{3+}$ 添加固体レーザーに初めて適用した。低パワー励起での高効率パルス発生に成功し、その結果より高出力化への実現に向けて問題点や課題等を明らかにした。最後に第五章で、全体の総括が述べられている。

以上の結果は、国際的学術誌等に 13 報の英文論文（7 報が第 1 著者）として発表されており、審査委員会は出願論文が博士（理学）の学位を授与するに値すると全員一致で判断した。