

千葉工業大学

博士学位論文

シリカガラスファイバーを用いた
GHz 高繰り返し発振レーザーの開発

2021年3月

山崎 祐

内容梗概

本論文は、著者が千葉工業大学大学院工学研究科工学専攻博士後期課程に行った、シリカガラスファイバーを用いた GHz 高繰り返し発振レーザーの開発についてまとめたものである。

光産業の中で、近年ファイバーレーザーの成長が著しい。OITDA（一般財団法人光産業技術振興協会）の2019年報告によると、ファイバーレーザーの国内出荷総額はこの数年、年率10~20%程度で成長し、2018年度には754億円（前年度比+19.6%）に達している。これはファイバーレーザーが共振器に導波路の光ファイバーを用いており、発振効率が高い点、レーザー発振に複雑な光学調整が不要である点など、他のレーザーより優れた特長を有しているからである。その用途は、レーザー加工や各種計測用の光源としての利用などがあげられる。ファイバーレーザーの応用用途を広げるべく、これまで、発振波長の多様化、高出力化、パルス発振化が精力的に研究されてきた。最近では、パルス発振の繰り返し周波数 f をGHz以上、時間間隔で1ナノ秒以下にした、高繰り返しファイバーレーザーに関する研究も盛んに行われている。特に、数GHzの高繰り返しパルス列を用いた加工が、通常の数10kHzのパルス列による加工と比較して、加工効率が高いことが2016年にNatureへ掲載されて以降、学界に限らず産業界においても高繰り返しファイバーレーザーの開発が活発になっている。

GHzの高繰り返しを得る方法ではこれまでに、①導波路を用いた周波数の重畳化：数MHzのパルスから高次の繰り返し周波数のパルス列を得る方法、②短尺共振器による高繰り返し化：希土類イオンを高濃度（1.0 wt. %）添加したファイバーを用いて長さ約100mmの共振器を構成し、直接数GHzのパルス列を得る方法が提案されている。①導波路による重畳化では、ファイバーを用いた導波路を工夫する必要がある、装置は複雑化する傾向にある。一方、②の短尺共振器は、共振器が単純な構成であるため、2010年ごろから盛んに研究されている。希土類イオンの高濃度添加とその分散性の確保から、リン酸ガラスやフッ化物ガラスなどイオン結合性の素材を用いたファイバー作製例が多いが、これらの素材は耐水性が低く実用には向いていなかった。シリカガラスファイバーによる短尺共振器レーザーでGHzの高繰り返しを実現できれば、レーザー加工がより普及する可能性を秘めている。

ゼオライト法は、シリカガラスへ希土類イオンの高濃度添加を簡便に実現できる手法である。本研究では、ゼオライト法によりシリカファイバーを作製し、高繰り返しパルスレーザーの実現を目指した。希土類イオンの中でも、Nd³⁺イオンは4準位系のレーザー発振を実現できることから、そのレーザー発振閾値は低い。このため、可飽和吸収体を用いたモード同期の実現も、3準位系のYb³⁺、Er³⁺と比較してより低出力なレーザーで実現できる可能性が高く、熱に弱い可飽和吸収体にとって非常に有利となる。そこで、近年研究事例の少なかった、Nd³⁺を高濃度添加したシリカガラスシングルモードファイバー（Nd doped Silica Glass Single-mode Fiber : Nd-SMF）を用いて短尺共振器レーザーを開発し、波長1060nm帯で数GHz以上のパルス列を得る事を研究の目的とした。

一方短尺共振器レーザーは、ファイバーの使用量が少なく、レーザー自体の小型化・量産性向上といった優位点も有している。これまでゼオライト法は、波長1.0 μ m帯で発振するNd³⁺イオンとYb³⁺イオンの高濃度添加シリカガラスしか作製例がない。Er³⁺イオンは目に安全な波長1.55 μ m

帯で発振するため、ゼオライト法を Er^{3+} イオンにも拡張できると、その応用はさらなる広がりが見込める。そこで、 Er^{3+} イオンを高濃度添加したシリカガラス (ErZSG) を作製してその光学特性を明らかにし、波長 1.55 μm 帯の短尺共振器レーザーの構築可能性を明らかにすることも目的とした。

第 1 章では、これまで行われてきたファイバーレーザーの研究について俯瞰した。特に、GHz の高繰り返し周波数を有するパルスレーザーについて着目し、その応用用途と、これまでに提案されているその実現方法の詳細を述べその問題点について明確化した。その解決手段として、ゼオライト法が有望であることを説明し、その優位性を明らかにした。

第 2 章では、Nd-SMF の作製方法とその特性評価方法について示した後に、Nd-SMF を用いて共振器長 40 mm のファブリペロー型レーザーを提案し、実際に CW 発振するか検証・評価しその特性を議論した。その結果、レーザーの出力は最大 19.7 mW、スロープ効率 は 14.6 % に達することを明らかにした。そのビーム品質は 1.01~1.03 と非常に高品位であることを示した。これらから、レーザー共振器の構成を変えることで、2.6 GHz の繰り返し周波数をもつパルスレーザーの構築が見込める事を示した。

第 3 章では、実際に Nd-SMF パルスレーザーを提案・構築し、発振特性について評価・議論した。共振器長 40 mm の Nd-SMF 共振器は、半導体可飽和吸収体を用いた受動モード同期によるパルス発振を実現し、レーザーの出力は最大 27.2 mW、スロープ効率は 20.8 % に達した。その繰り返し周波数は、第 2 章で予想した 2.6 GHz となった。これはシリカガラスファイバーを用いたレーザーの基本繰り返し周波数としては、筆者の知る限り最速の値であり、本手法の優位性を示す結果である。また、レーザーは Q-Switched mode-locking と呼ばれる状態にあることも明らかにした。

第 4 章では、ErZSG の作製方法とその光学特性評価方法について示し、ErZSG の光学特性を評価・議論した。 Er^{3+} イオンを 0.96 wt. % 添加したシリカガラスの蛍光量子収率は 45.6 % となり、 $L = 100 \text{ mm}$ 短尺共振器レーザーの構築が十分見込めることを明らかにした。

第 5 章では、これらの結果をまとめて結論とした。また、今後実施されるべき課題について合わせて記載した。

目次

第1章 序論.....	- 1 -
1.1. ファイバーレーザー市場とその成長.....	- 1 -
1.2. 光ファイバーの特長.....	- 2 -
1.3. ファイバーレーザー要素研究の歴史.....	- 3 -
1.4. 高繰り返しパルスレーザーの応用用途.....	- 9 -
1.5. 高繰り返しパルスレーザーの現状と問題点.....	- 10 -
1.6. ゼオライト法.....	- 15 -
1.7. 本研究の目的.....	- 17 -
1.8. 参考文献.....	- 17 -
第2章 シリカガラスファイバーを用いた短尺共振器 CW レーザーの開発と発振検証.....	- 22 -
2.1. ファイバーの作製と評価方法.....	- 22 -
2.1.1 設計方法.....	- 22 -
2.1.2 作製方法.....	- 23 -
2.1.3 特性評価方法.....	- 28 -
2.1.4 ファイバーの導波路シミュレーション方法.....	- 30 -
2.2. 短尺共振器 CW レーザーの開発と発振検証方法.....	- 31 -
2.2.1 レーザー共振器.....	- 31 -
2.2.2 発振特性評価方法.....	- 32 -
2.3. 結果と考察.....	- 33 -
2.4. 参考文献.....	- 41 -
第3章 シリカガラスファイバーを用いた GHz 高繰り返し発振レーザーの開発と発振検証.....	- 42 -
3.1. GHz 高繰り返し発振レーザーの開発と発振検証方法.....	- 42 -
3.1.1 レーザー共振器.....	- 42 -
3.1.2 発振特性評価方法.....	- 43 -
3.2. 結果と考察.....	- 43 -
3.3. 参考文献.....	- 53 -
第4章 他波長への展開に向けた希土類高濃度添加シリカガラスの光学特性評価.....	- 54 -
4.1. 実験.....	- 54 -
4.1.1 Er Zeolite のイオン交換.....	- 54 -
4.1.2 Er ³⁺ 高濃度添加シリカガラス (ErZSG) の作製.....	- 55 -
4.1.3 材料組成と物性評価方法.....	- 55 -
4.1.4 分光特性評価方法.....	- 56 -
4.2. 結果と考察.....	- 57 -
4.3. 参考文献.....	- 66 -
第5章 結論及び今後の課題.....	- 68 -
業績リスト.....	- 69 -

シリカガラスファイバーを用いた GHz 高繰り返し発振レーザーの開発
1879508 : 山崎 祐

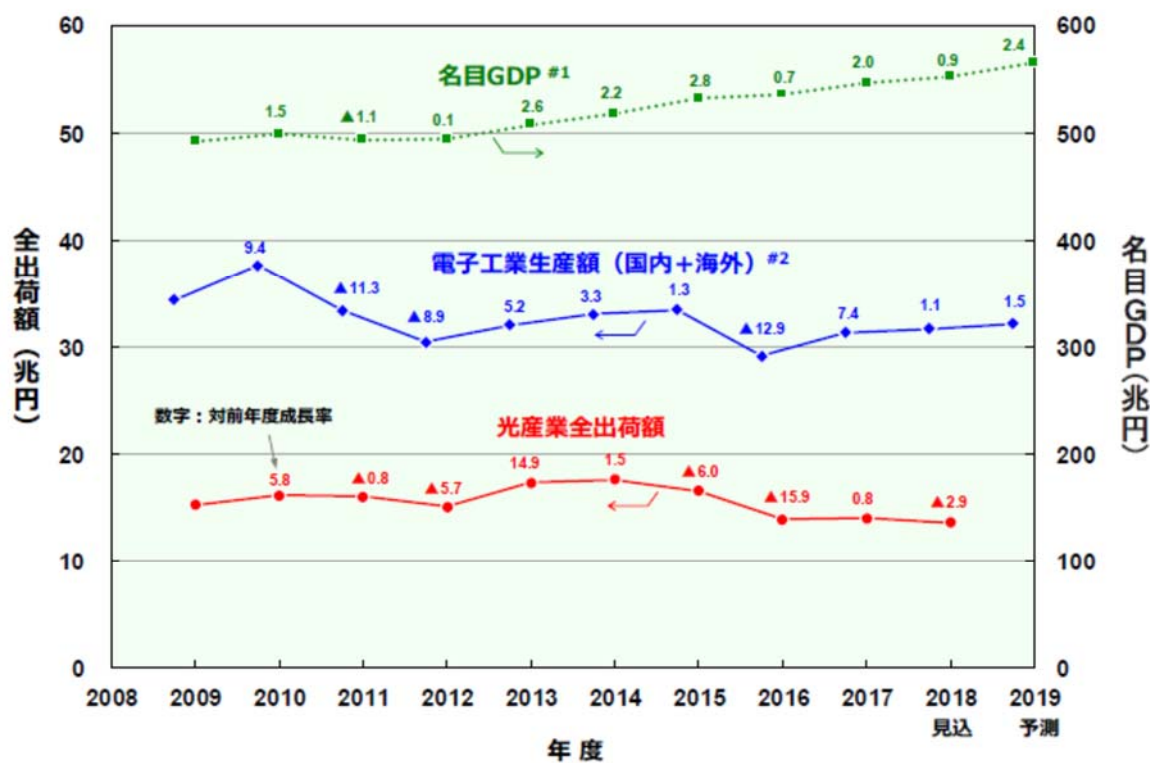
謝辞..... - 70 -

第1章 序論

本章では、これまでに高繰り返しパルスレーザーの応用用途、これまでに提案されている実現方法の詳細とその問題点について明確化した。ゼオライト法について説明する。

1.1. ファイバーレーザー市場とその成長

ファイバーレーザーとは、レーザー発振の主体となる共振器を構成するレーザー媒質が、光ファイバーであるレーザーを指す。OITDA（一般財団法人光産業技術振興協会）が2019年3月に発表した、“2018（平成30）年度 光産業全出荷額、国内生産額調査結果について[1]”によると、我が国の光産業国内生産額（2018年度）は13兆6,348億円（成長率▲2.9%）である（Fig. 1-1）。



#1 内閣府：2017年度国民経済計算年次推計／平成31年度経済見通し（2019年1月28日閣議決定）
 #2 JEITA：電子情報産業の世界生産見通し、2018年12月

Fig. 1-1 光産業全出荷額、名目 GDP、電子工業国内生産額+海外生産額の推移[1]

この中で、“レーザー・光加工分野”の出荷額は7,158億円と、構成は9.7%と低いですが、その成長率は+13.9%と全7分野の中で一番高い(Fig. 1-2)。特にファイバーレーザーの成長率は+19.6%と、特に成長が著しい。

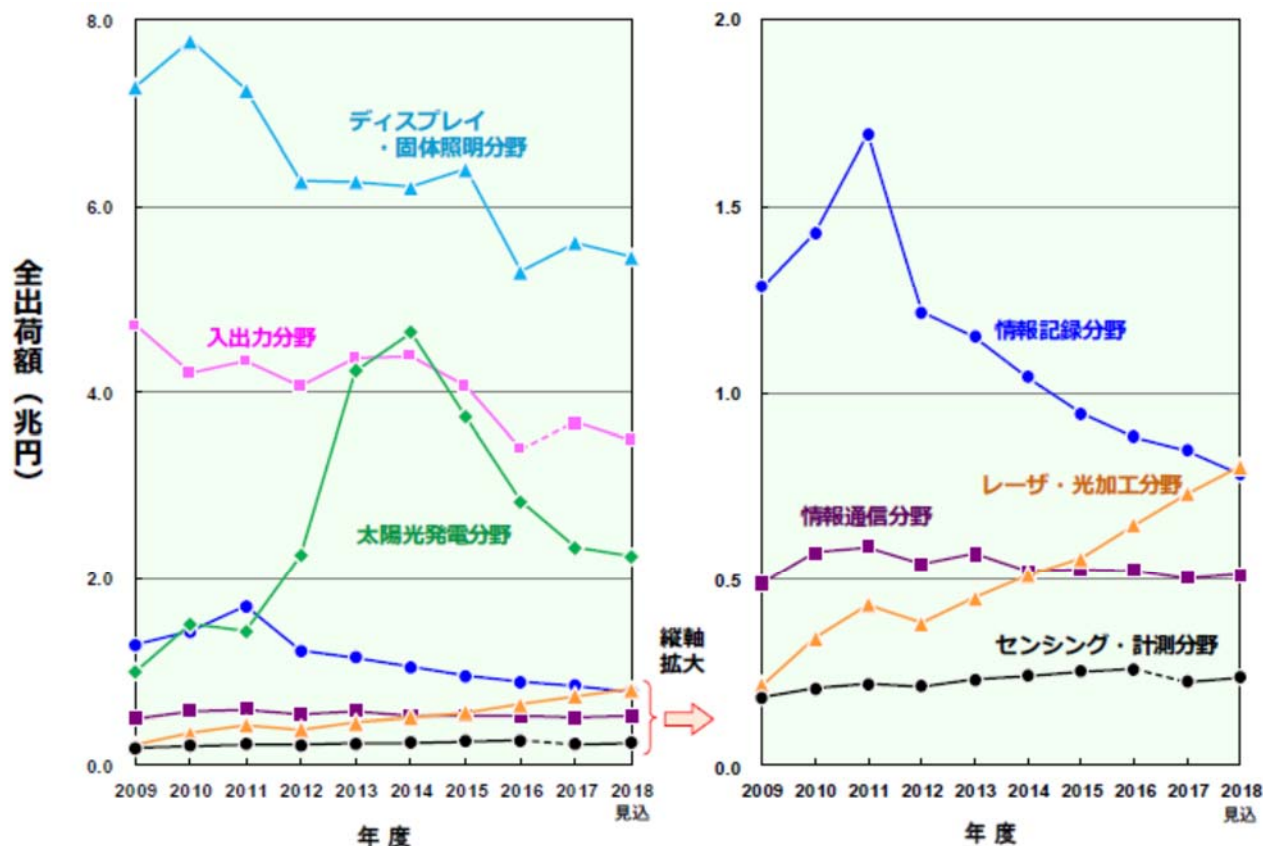


Fig. 1-2 光産業全出荷額の分野別推移[1]

1.2. 光ファイバーの特長

光ファイバーは、コアとクラッドからなる導波路である。そのクラッドは外径が、 $\phi 80 \mu\text{m} \sim \phi 400 \mu\text{m}$ 程度であり、シリカガラスにより作製されたものが多い。外側には樹脂による被覆がなされており、釣り糸のようにポビンなどに巻き付けることが可能である。コアの屈折率は、周りを取り囲むクラッドの屈折率に対して数%程度高い値を持つ。したがって、コア内に入射した光はコア・クラッド界面で全反射を起こし、コア内に閉じ込められ伝搬する。光ファイバーの特長を以下に挙げる。

- ①光路調整が不要：ファイバー内に入射した光は、ファイバーに沿って伝搬する。
- ②堅ろう性に優れる：ファイバーが温度変化・振動しても、光が内部を伝搬する。
- ③小型で軽量：外径 $125 \mu\text{m}$ 、長さ 1 km の石英（シリカ）ガラスは体積 12.3 cm^3 、重さ 26.9 g である。
- ④高ビーム品質化が容易：NA（開口数）の制御でガウシアン状のビームとなる。
- ⑤量産性に優れる：外径 10 mm 、長さ 100 mm のガラスロッドから、外径 $125 \mu\text{m}$ 、長さ 640 m ものファイバーを作製できる。

ファイバーレーザーは、光ファイバーを共振器に用いており、本質的に小型で高効率という特長を有している。さらにその高い堅ろう性から、レーザー発振時に複雑な光学調整が不要な場合が多い。これらの特長を活かして、産業界では加工用途、学界では主に計測用途として、広くファイバーレーザーが普及しつつあることが市場の高成長の背景にある。

1.3. ファイバーレーザー要素研究の歴史

ファイバーレーザーの要素研究では、応用用途を広げるべく主に4つの方向性で研究が実施されてきた。①発振波長の多様化、②高出力化、③パルス発振化・時間幅の短縮化、④パルスの繰り返し周波数高速化である。レーザー学会のファイバーレーザー技術専門委員会の報告[2]と著者の調査を Table 1-1 にまとめた。

Table 1-1 ファイバーレーザーの研究・開発目的とその代表的な実現手段

目的	実現手段	代表的な研究例, 要素など
① 発振波長の多様化	コアに添加する活性イオンの変更 非線形光学効果の利用	希土類イオン[3-8] Bi[9-11] スーパーコンティニューム[12, 13] ラマンレーザー[14] 波長変換結晶[15]
② 高出力化	レーザー励起用 LD の充実 ファイバー素子の充実	ファイバー結合 LD の登場[16, 17] 波長選択性の充実 ポンプコンバイナ, ダブルクラッドファイバの使用[18] フォトニッククリスタルファイバー[19, 20]
③ パルス発振化, パルス時間幅の短縮化	Gain Switching Q スイッチ法 モード同期法	励起用 LD をパルス駆動させる[21] 可飽和吸収体 (SESAM, カーボンナノチューブ, カーボンシート)[22, 23]を用いる
④ 繰り返し周波数の高速化	遅延光路の利用 共振器長の短尺化	Repetition Rate Multiplier [24] Harmonic mode locking [25, 26] カーレンズ効果の利用[27] リン酸ガラスファイバー[28-30] シリカガラスファイバー[31]

① 発振波長の多様化

電磁波にとって、波長はもっとも重要なパラメータの1つである。レーザーにおいても同様に、発振波長を拡張することは最も重要な研究と言える。実現手段としては、レーザー媒質の光ファイバーコアに添加する活性イオンを変える方法、光ファイバーや各種結晶の非線形効果を用いて波長を変換する方法がある。前者では、希土類イオンのNd³⁺[3]を用いたファイバーレーザーが1961年には実現しており、その後Er³⁺[4,5], Yb³⁺[6], Tm³⁺[7], Pr³⁺[8]など他の希土類イオンに拡張されている。希土類以外にも、2001年にはBi[9-11]が発見され、発振波長は可視～中赤外域に渡っている。しかしながら、その発振波長は、レーザー媒質中の活性イオンのエネルギー準位に依存しており、活性イオン毎に特定の波長帯に限られている (Table 1-2)。そこでこれらのレーザーからの発振光を、各種非線形光学効果により周辺の波長へと変換する試みが行われている。例えば、光ファイバーを用いた波長変換では、光強度に応じて屈折率が変化する自己位相変調などを用い、波長が連続的な広帯域の発振光へ変換させる方法 (スーパーコンティニュームレーザー[12, 13]) や、ファイバーの素材自体のラマン散乱を誘起して波長をシフトさせる方法 (ラマンレーザー[14]) などが実現されている。さらに、ファイバーレーザーからの発振光を波長変換結晶に入射させて、2倍波や3倍波の波長へ変換し、紫外波長域の発振を得ている[15]。このように、ファイバーへの添加イオンの多様化及び、ファイバーの非線形効果・波長変換結晶の利用によって、ファイバーレーザーの発振波長は紫外域 (0.2 μm) ～中赤外域 (3.0 μm) へと広がっている。

Table 1-2 添加イオンと発振波長の一覧.

添加イオン	主な発振波長
Nd ³⁺	1.06 μm
Er ³⁺	1.55 μm, 3.0 μm
Yb ³⁺	1.04 μm
Tm ³⁺	2.00 μm
Pr ³⁺	1.30 μm
Bi	1.20 μm

② 高出力化

レーザーは光源であり、その出力向上は重要な課題である。1970年台から励起光源としてファイバー結合型の高輝度・高出力なLDが開発されたこと[16, 17]、半導体成膜技術の向上によりLDの波長を、ファイバーに添加したイオンの吸収に合わせて自由に最適化可能となったことによって、ファイバーレーザーの高出力化は進展した。光ファイバーのコア径は従来φ ~ 10 μm程度であり、その端面が損傷するため必ずしも高出力化には適していなかった。1980年代後半からは、各種ファイバー光学素子 (ポンプコンバイナ, ダブルクラッドファイバ[18]) が開発され、ファイ

バーコアの大口径化が進行した。現在はコア径 ϕ 300 μm のファイバーを用いた平均出力 100 kW に達する CW ファイバーレーザーが市販されるに至っている[32]。パルスファイバーレーザーでは、コア径 ϕ 100 μm フォトニッククリスタルファイバーを用いることで、1.1 kW もの平均出力が達成されている[19, 20]。

③ パルス発振化，パルス時間幅の短縮化

レーザー発振は通常、時間的に一様な連続波 (=Continues Wave : CW) 発振であるが、パルスの間欠出力であるパルス発振も可能である。パルス発振は、短い時間に光エネルギーを集中させるため、同じ時間あたりの平均出力が同じでも、1 パルスあたりのエネルギーは CW 発振より上がる。また、同じ 1 パルスエネルギーでも、パルスの時間幅を狭くすると、パルスのピーク出力 (尖頭値) も上がる。Fig. 1-3 に、パルス発振および CW 発振時のレーザー出力のイメージを示した。すべて、単位時間当たりの平均出力がそろうように、強度を変えた。CW 発振時とパルス発振時では強度が大きく変わっている。さらにパルス発振では、時間幅が短くなるにしたがって尖頭値が高くなる様子が分かる。

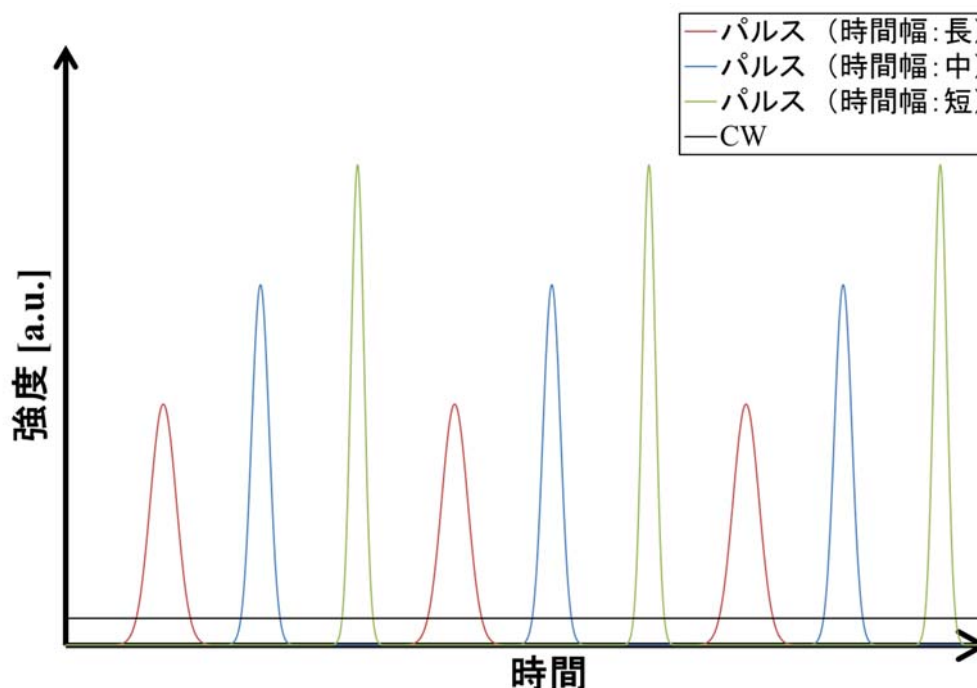


Fig. 1-3 CW およびパルス発振時のレーザー強度 vs 時間。単位時間当たりの平均出力はすべて等しくした。パルス発振では、パルスの時間幅を変化させた。

ファイバーレーザーでは、パルス発振を実現させるために、Gain Switching 法や、Q スイッチ法、モード同期法が取られる。

第1章 序論

Gain Switching 法は、励起の LD 光源を直接パルス駆動させ、ファイバーレーザーをパルス発振させる方法である。電気的に変調させることから、電源及び LD の電気回路を高速応答させる必要があり、現状最短で 10 ピコ秒程度のパルスしか得られていない[21].

Q スイッチ法は、レーザー共振器内の光損失を取って大きくした状態でレーザー媒質に反転分布を形成し、瞬間的に損失を小さくする (Q 値を大きくする) ことで、パルス光を得る手法である。ファイバーレーザーでは、光損失を音響光学素子によって能動的に制御した例[22]や、半導体可飽和吸収ミラー (= Semiconductor Saturable Absorber Mirror : SESAM) によって受動的に制御した例[23]がある。前者は音響光学素子の駆動時間に依存しており、数マイクロ～サブマイクロ秒のパルスしか得られていない。また、後者もナノ秒程度である。

レーザー共振器の内部には、振動数 ν が離散的に異なった光が多数存在している (縦モード)。モード同期法は、これらの光の位相をそろえてパルスを得る方法である。縦モードの位相は、カーレンズ効果や半導体可飽和吸収ミラーを用いて揃えることができる。以下、縦モードとモード同期について少し詳しく見る。ファブリペロー共振器は、対向するミラー間にレーザー媒質を置くことで共振器を構成する。共振器内に存在する定在波としての光は、ミラーの表面に光波の節が来ないと安定に存在できない。したがって、光路長は共振器長 L と共振器の屈折率 n 、発振波長 λ の間には、整数 N を用いて次式の関係がある。

$$nL = \frac{N}{2}\lambda \quad \text{式 1-1}$$

式 1-1 は、光速度 c と周波数 ν を用いて書き換えることができ、

$$\nu_N = \frac{Nc}{2nL} \quad \text{式 1-2}$$

式 1-2 を得る。 N は自然数であることから式 1-2 は、周波数 ν_N が、共振器長に応じて飛び飛びの値しか取れないことを意味する。これをレーザーの縦モードといい、その周波数間隔 $\Delta\nu$ は

$$\Delta\nu = \frac{c}{2nL} \quad \text{式 1-3}$$

となる。式 1-3 を波長に換算すると、縦モードの波長間隔 $\Delta\lambda$ は

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{2nL} \quad \text{式 1-4}$$

となる。なお、レーザー媒質ではない通常の誘電体 (ガラス、空気など) を対向する平行な反射面で挟んだ場合を、ファブリペロー干渉計と言う。ファブリペロー干渉計に光を入射させた際、上記と同様に干渉計内部では定在波が生じ、特定の波長のみ透過率が高くなるが、この波長間隔も、誘電体の屈折率 n を用いて式 1-4 で示される。ファブリペロー干渉計は、必ずしも 2 枚の対向するミラーを必要とはせず、光学素子などの平行平板それ自体が干渉計を構成する事がある。

モード同期レーザーでは、ある瞬間に共振器内の縦モードの位相を揃えることで、パルスを得る。今、共振器内に m 個の縦モードが存在し、それぞれの縦モードの電場振幅は等しく E_0 、位相

第1章 序論

を φ_N とすると、全縦モードによる電場 $E(t)$ は

$$E(t) = E_0 \sum_{N=1}^m \exp\{i(2\pi\nu_N t + \varphi_N)\} \quad \text{式 1-5}$$

とあらわすことができる。今、モード同期を想定して $\varphi_N = 0$ とすると、

$$\begin{aligned} E(t) &= E_0 \sum_{N=1}^m \exp\{i(2\pi\nu_N t)\} \\ &= E_0 \frac{\exp\{i(2\pi\Delta\nu t)\}[1 - \exp\{i(2\pi\Delta\nu m t)\}]}{1 - \exp\{i(2\pi\Delta\nu t)\}} \end{aligned} \quad \text{式 1-6}$$

をえる。したがって、モード同期時の電場強度 (= レーザー強度) は、

$$\begin{aligned} |E(t)|^2 &= |E_0|^2 \left| \frac{1 - \exp\{i(2\pi\Delta\nu m t)\}}{1 - \exp\{i(2\pi\Delta\nu t)\}} \right|^2 \\ &= |E_0|^2 \frac{\sin^2 \pi \Delta\nu m t}{\sin^2 \pi \Delta\nu t} \end{aligned} \quad \text{式 1-7}$$

となる。この関数は周期 ΔT が π の周期関数であることから、レーザー強度はパルス間隔 ΔT として出力される。

$$\Delta T = \frac{1}{\Delta\nu} = \frac{2nL}{c} \quad \text{式 1-8}$$

以上の議論から、モード同期により得られるパルスの繰り返し周波数 f は

$$f = \frac{1}{\Delta T} = \frac{c}{2nL} \quad \text{式 1-9}$$

となり、縦モード間隔と等しくなることが分かる。Fig. 1-4 に、 $m=10$ とした際にモード同期の場合 (式 1-7) と、初期位相がランダムな場合 (式 1-5 より計算) で示される、電場強度をプロットした。モード同期時は、出力の時間変動がパルス状になっているのに対し、初期位相がランダムな場合は複雑な時間変動となっていることが分かる。実際の共振器では、 m は 100 ~ 1000 程度の値を取ることが多く、初期位相がランダムな場合の出力は時間によらずほぼ一定値 (= CW) とみなすことができる。

得られるガウシアンパルスの最小時間半値全幅 Δt は、発振波長 λ とその波長半値全幅 $\Delta\lambda$ から、不確定性原理を用いて以下のように計算できる。

$$\Delta t \geq \frac{2\ln 2}{\pi} \frac{\lambda^2}{c\Delta\lambda} \quad \text{式 1-10}$$

$\lambda = 1.060\mu\text{m}$ の場合、 $\Delta\lambda$ と Δt は Table 1-3 のようになる。

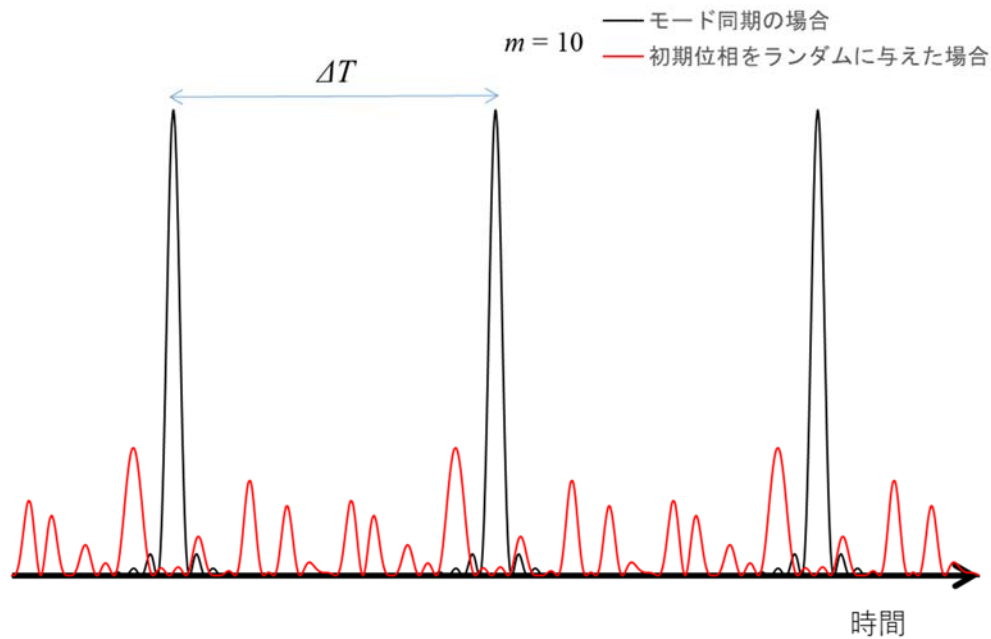


Fig. 1-4 $m = 10$ とした際にモード同期の場合（式 1-7）と，初期位相がランダムな場合（式 1-5 より計算）で示される，電場強度．モード同期時は，周期 ΔT のパルス出力が得られている

Table 1-3 波長 $1.060\mu\text{m}$ のパルスが取りうる，最小の時間幅．

$\Delta\lambda$ [nm]	Δt [fs]
1.0	1653
2.0	826
5.0	331
10	165
20	83

④ 繰り返し周波数の高速化

①～③に加え，最近はパルス同士の時間間隔が 1 ナノ秒以下，パルス発振の繰り返し周波数が GHz 以上である“高繰り返しファイバーレーザー”に関する研究が盛んに行われている．その研究詳細については，1.4.および 1.5.で述べる．

1.4. 高繰り返しパルスレーザーの応用用途

数 GHz の繰り返し周波数を有する高繰り返しレーザーは、宇宙探査を目的とした分光計測時の光周波数コムを利用した標準光源[33-35]，ナノ秒以下の超高速現象を捉えるカメラ用光源[36]や、次世代の高速光通信[37]の光源として、それぞれ応用が期待されている。レーザー加工では、加工対象の試料にレーザーが照射される際、生じた熱により損傷を受け不可逆的な変質を受けることがある。そのような変質部位は、熱影響部 (=Heat-Affected Zone : HAZ) と呼ばれる。熱に弱く熱伝導率が低い、炭素繊維強化プラスチックや合成樹脂などの有機物[38]，セラミックス[39]，薄膜太陽電池[40]などでは、HAZ の影響が無視できず、HAZ を生じさせないレーザー照射法が積極的に研究されている。中でも、2016 年に Can Kerse らが Nature に発表した、アブレーションクーリングと名付けられたレーザー照射法[41]は注目を集めている。彼らは、数 GHz もの繰り返し周波数を有するパルス照射を照射し、加工対象の試料に蓄積される熱を減少させ、HAZ を生じないようにした。これは、パルス照射によって加工対象物質内に生じた残留熱が、加工領域から拡散してしまう前に、次のパルスを照射してアブレーションさせることで HAZ を生じさせない方法である (アブレーションクーリング)。Fig. 1-5 は、文献[41]に示された高繰り返しパルス加工の優位性を示す一例である。(a)は1パルスあたり 2500 μJ のエネルギーを持つパルスを 25 kHz の繰り返し周波数で、(b)は1パルスあたり 1.7 GHz の高繰り返し周波数と 100 μJ のエネルギーを持つパルスを、25発を1単位として、25 kHz の繰り返し周波数で人の歯に照射した結果である。両者とも投入した単位時間当たりのエネルギーは、 $2500 \mu\text{J} \times 25 \text{ kHz} = 62.5 \text{ W}$ とし、実際の照射時間は記載がないが、時間を揃えて加工がされている。投入エネルギーが同じことから、加工後の穴径・深さはほぼ同様である。しかしながら、(a) 通常の繰り返し周波数では熱により炭化した損傷が見えるが、(b)高繰り返しパルスによる加工では、炭化が一切見られず、HAZ が生じていない。文献では他にも、1パルスエネルギーをそれぞれ 1/25 にした際の加工結果にも言及しており、高繰り返しパルスでは、通常のパルスよりも約4倍加工速度が速かったとしている。

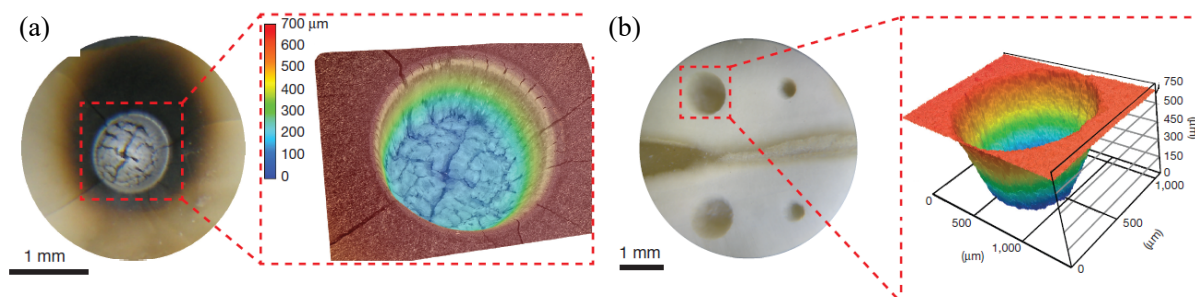


Fig. 1-5 人の歯に対してパルスを照射し、アブレーションクーリングを説明した例。(a)は 25kHz (b)は 1.7GHz の繰り返し周波数をもつパルスを照射している。図は、[41]より転載した。

1.5. 高繰り返しパルスレーザーの現状と問題点

アブレーションクレーリングでは、最速で3.46 GHzもの高繰り返し周波数であるバーストモードのパルス列が使用されたが、3.46 GHzのパルス列は108 MHzのフェムト秒レーザーから得ている[24]。最初に、108 MHzのフェムト秒パルス列は、50 : 50の割合で2分割される。一方のパルス列を、もう一方のパルス列に対して、半周期だけ遅延するように調整した遅延光路に入射させた後、これらを再度結合させることで、2倍の繰り返し周波数である216 MHzのパルス列を得る。この遅延光路は、Repetition Rate Multiplier (= 繰り返し周波数乗算器) と呼ばれ、乗算器を5回段にして、3.46 GHzのパルス列を得ている(Fig. 1-6 [24])。この手法は、100 MHz程度数の一般的な繰り返し周波数のファイバーレーザーを使用できる利点がある一方、乗算器に用いる遅延光路はファイバー長を細かく調整する必要がある。このように、繰り返し周波数乗算器を用いると、パルスレーザーの構成はやや複雑になる問題があった。

Repetition Rate Multiplier :

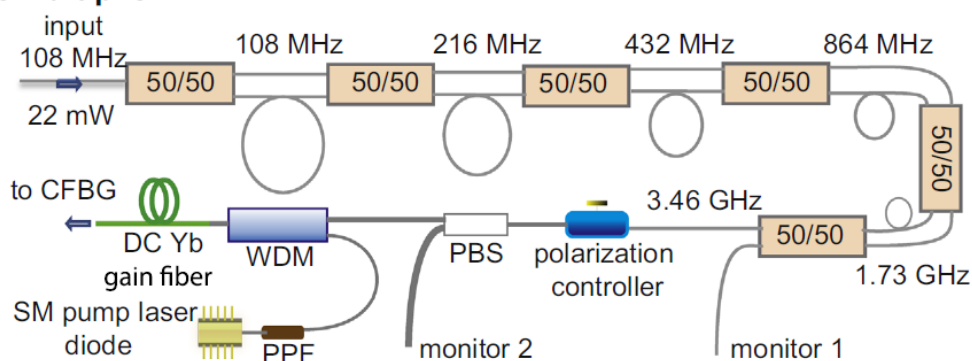


Fig. 1-6 アブレーションクレーリングを提唱した論文で採用された、パルス列の繰り返し周波数乗算器の構成。108 MHz の入射パルス列が、5 段の乗算器を経た後 3.46 GHz となって出射される [24]。

他の手法では、高調波受動モードロック (Harmonic mode locking : HML) が使われる[25, 26]。HMLでは、数10 MHzの繰り返し周波数パルス光を光ファイバーで構成したリング共振器内に蓄積し、何度も循環させることで、数GHzのパルス列を得る。例えば、42.8 MHzのパルス列 (1次周波数) から35次の高調波である1.5 GHzのパルス列[25]や、1次周波数23.4 MHzのパルス列から91次2.13 GHzの高調波[26]を得ている。HMLもまたレーザー共振器の短尺化に対する要求は緩和される長所がある。しかしながら、リング共振器内でパルスを循環させるには、特殊なソリトンパルスを用いる必要がある。通常、光ファイバー中を伝搬するパルスは、波長ごとに伝搬する速度が異なり (= 波長分散)、時間幅が広がる。ソリトンパルスは、リング共振器内の波長分散を分散補償して0にし、時間幅が広がらなくなったパルスを指す。分散補償は、光ファイバーからの出射光を回折格子で分光し、波長ごとの光路長を調整し再度回折格子で集光、光ファイバーに再度結合させて実施しており、調整が複雑になっている(Fig. 1-7 [42])。

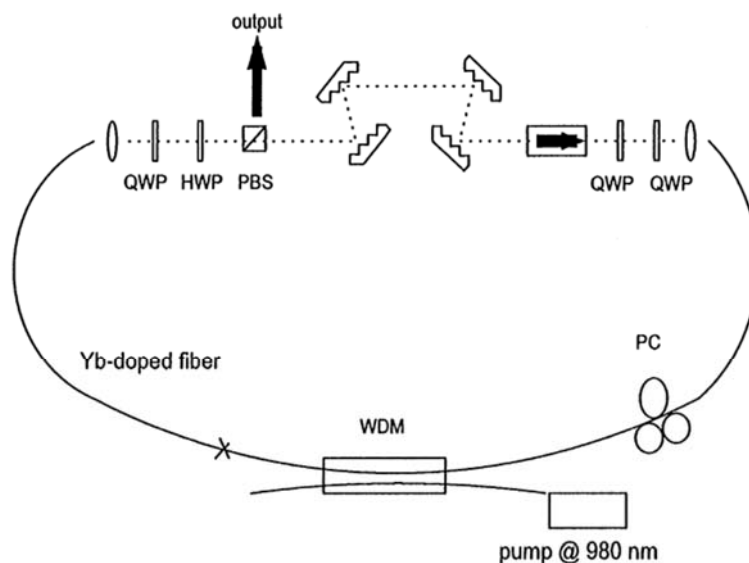


Fig. 1. Experimental setup: HWP, half-wave plate; QWPs, quarter-wave plates; PBS, polarizing beam splitter; PC, polarization controller; WDM, wavelength-division multiplexer.

Fig. 1-7 HMLにより 1.5 GHz を得たリング共振器[42]. ソリトンパルスを得るために、グレーティング対を2つ使用して光路長を調整し、光ファイバー起因の分散を補償している。

一方、式 1-9を用いて、モード同期によりパルス列を得た場合の繰り返し周波数を考えてみる。例えば、波長 $1.060\ \mu\text{m}$ におけるシリカの屈折率 1.4545 を式 1-9に代入し、各共振器長 L に対する繰り返し周波数 f を計算すると、Table 1-4のようになる。共振器長 L を $100\ \text{mm}$ 以下にして短尺共振器レーザーを構築し受動モード同期させると、GHzオーダーの基本モード周波数を有するパルス列を直接得ることができ、これまでに述べた手法と比較して、レーザーの構成ははるかに簡素化できることが分かる。

Table 1-4 共振器長と繰り返し周波数の計算例。波長 $1.060\ \mu\text{m}$ の屈折率 1.4545 を式 1-9 に代入して計算した。

共振器長 L [mm]	繰り返し周波数 f [GHz]
100	1.0
50	2.1
10	10
5.0	21
1.0	100

電気光学カー効果は、物質の屈折率が入射する光強度の二乗に比例して増大する現象である。電気光学カー効果により、物質内を伝搬する光は自己収束を起こしてビーム径が小さくなる（カーレンズ効果）。予め共振器でCW発振を実現させた後、励起光強度を上げてカーレンズ効果によってビーム径を縮小することで、共振器内の光増幅率を上げ、モードロック動作の誘発が可能である。Yb:Y₂O₃セラミックスを用いたレーザーでは共振器長を数 mmとし、20 GHzもの高繰り返しパルス発振を実現している[43, 44]。しかしながら、カーレンズ効果を用いたモードロック動作は自己スタートが難しく、共振器を構成するミラーをピエゾ素子で振動させるなど、外部からの摂動が必要であった。また、共振器のアライメントはシビアであり、レーザー共振器の構築は難しかった。さらに、CW発振時のビーム径は、パルス発振時のビーム径より大きくする必要があり、ファイバーレーザーではカーレンズ効果によるモードロック動作の実現は難しい問題があった。フォトリソグラフィを用いたファイバーによる例が、わずかにシミュレーションによる提案[27]されているに留まり、カーレンズ効果によるモード同期ファイバーレーザーは実現されていない。

一方、可飽和吸収体を、希土類イオンを添加したファイバーを用いたファイバーレーザーに組み込んでファブリペロー型の短尺共振器を構成し、パルスを得る手法が提案されている[28-31, 45-47]。この方法では、ファイバーのコアに添加する希土類イオン濃度を1.0 wt. % ($\sim 1.0 \times 10^{20}$ 個/cm³)以上にする必要がある。問題となるのが、希土類イオンのクラスター形成による消光 (= 濃度消光) である。以下では、本研究で扱うNd³⁺とEr³⁺について、エネルギーダイアグラムを用いて、濃度消光について説明する。

Nd³⁺のエネルギー遷移過程[48]には、以下の(a) ~ (d)の4つがある。

(a) 放射緩和 (Radiative Decay : RD)

孤立するNd³⁺が蛍光を発して緩和する過程。波長0.808 μ mの励起光により、Nd³⁺は励起状態の⁴F_{5/2}, ²H_{9/2}へと励起され、レーザー上準位である⁴F_{3/2}へ格子振動を介して速やかに緩和する。⁴F_{3/2}からは、Fig. 1-8(a)中に記載した波長の蛍光(放射)を発して、それぞれの準位へと放射緩和する。特に、⁴F_{3/2} \rightarrow ⁴I_{15/2}への緩和を用いて、Nd³⁺では4準位系のレーザーを形成させることが多い。

(b) 多格子振動放出, 非輻射遷移 (Multiphonon Emission : ME)

Nd³⁺を取り巻くガラスの各種格子振動を介して、レーザー上準位から蛍光を発さず緩和する過程。

(c) 交差緩和 (Cross Relaxation : CR)

レーザー上準位に励起されたNd³⁺が、隣接する基底状態にあるNd³⁺へエネルギーを受け渡す緩和過程。この過程で、レーザー上準位にあったNd³⁺は⁴F_{3/2} \rightarrow ⁴I_{15/2}へと緩和、基底状態にあったNd³⁺は⁴I_{9/2} \rightarrow ⁴I_{15/2}へと励起され、エネルギーは分割される。2つの⁴I_{15/2}にあるNd³⁺は蛍光を発さず緩和してしまう。

(d) 励起移動 (Excitation Migration : EM)

レーザー上準位に励起されたNd³⁺が、隣接する基底状態にあるNd³⁺へエネルギーを受け渡し、自身は基底状態へと緩和する過程。

蛍光を發さず、消光を引き起こす緩和は、(b)MEと(c)CRである。一方、Nd³⁺が隣接することで生じる過程は、(c)CRと(d)EMである。これらの過程は、励起状態にあるNd³⁺ (ドナー) の遷移双極子と、基底状態にあるNd³⁺ (アクセプター) の遷移双極子が、双極子-双極子相互作用によってエネルギーを受け渡す、Förster機構で説明されている[48,49]。Förster機構によると、エネルギー移動が生じる確率 ζ は

$$\zeta = A_r \left(\frac{R_x}{R} \right)^6 \quad \text{式 1-11}$$

となる。ここで、 A_r はRDの遷移確率、 R はドナーとアクセプター間の距離を示し、Förster機構によるエネルギー移動は、 R^6 に反比例して急速に生じにくくなることが分かる。 R_x は、 $X=CR$ もしくはEMをとり、それぞれCR・EMにおける臨界距離を示し、次式で定義される。

$$R_x^6 = \frac{3c}{8\pi^4 n^2 A_r} \int \sigma_D^{em}(\lambda) \sigma_X^{abs}(\lambda) d\lambda \quad \text{式 1-12}$$

ここで、 $\sigma_D^{em}(\lambda)$ と $\sigma_X^{abs}(\lambda)$ は、Ndの各遷移における放射・吸収断面積をそれぞれ示す。シリカガラスでは、 $R_{CR} = 0.32 \text{ nm}$ 、 $R_{EM} = 0.94 \text{ nm}$ と計算されている[48]。シリカガラス内でNd³⁺がクラスターを形成すると、そのNd³⁺間の距離は約0.3 nmとなり、(c)CRによる失活が支配的になると説明されている。濃度消光の程度は、励起に用いた光子数に対する蛍光の光子数の割合である、“蛍光量子収率”で定量化される。Nd³⁺を1.0 wt.%添加したシリカガラスでは、量子収率が7%になることが示されている[48]。これが、Nd³⁺高濃度添加シリカガラスにおける濃度消光である。

Fig. 1-9にFörster機構によりEr³⁺に生じるエネルギー移動過程を示した[50]。Er³⁺では、(a)EMと(b)アップコンバージョン (Up Conversion : UC)が生じる。(b)UCでは、レーザー上準位⁴I_{13/2}にある二つのEr³⁺がドナー・アクセプターとしてエネルギー移動を起こす。アクセプターは⁴I_{9/2}へと励起されるが⁴I_{13/2}へと非輻射遷移し、結果的にドナーの励起エネルギーが失われる過程である。Nd³⁺と同様に、式 1-12でEr³⁺のUCにおける臨界距離を R_{uc} とすると、シリカガラスにおける R_{uc} は0.6 nmとされている[51]。

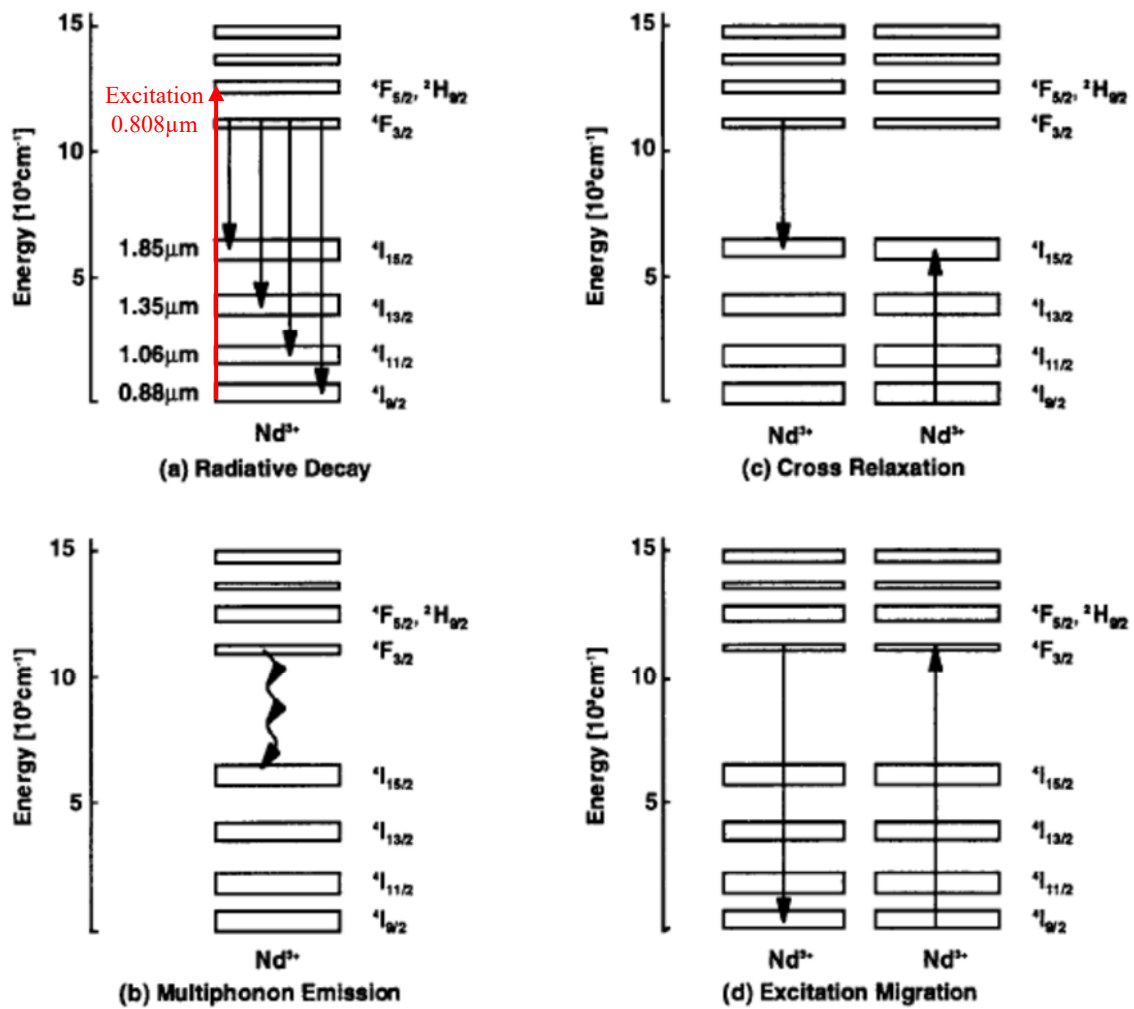


Fig. 1-8 Nd³⁺イオンの種々の緩和過程[48]. 一部筆者が追記をした.

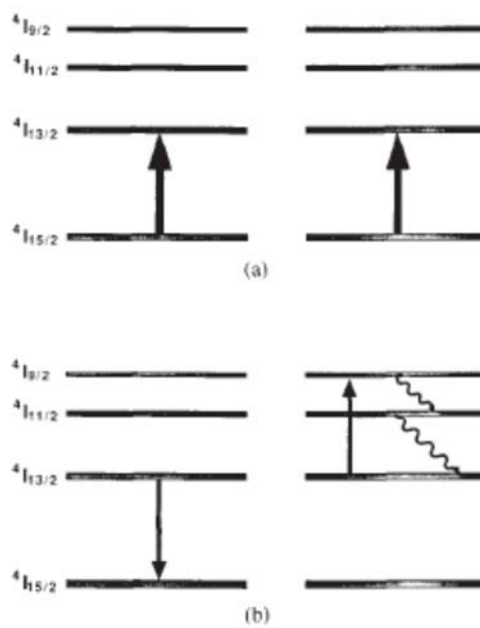


Fig. 1-9 Er³⁺イオンにおけるエネルギー移動過程[50].

リン酸ガラスは、希土類イオンを高濃度に添加させても均一に分散させることが可能であり、濃度消光が生じにくいことからこの種のファイバーレーザーに良く利用されている[28-30]. A. Martinez *et.al* は、 Er^{3+} を1.0 wt.%添加させたファイバーを用い、共振器長5 mm, 19.45 GHz [30], H. Cheng *et.al* は、 Yb^{3+} を15.2 wt.%添加して共振器長20 mm, 5 GHz [29] のレーザーをそれぞれ構築している. しかしながら、リン酸ガラスは化学的に耐久性が低く、水と容易に反応する問題を有している. ファイバの被覆を改良することで耐水性は克服されつつあるが、機械強度が低い問題も有る.

シリカガラスは、化学的・機械的に非常に安定である一方で、シリカガラスに希土類イオンを0.1 wt.%以上添加させると、希土類イオンがクラスターを形成し濃度消光を起こす[52]. したがって、希土類添加シリカガラスファイバーを用いて、GHz 以上の高繰り返しレーザーを構築した例これまでほとんどなかった[31,45-47]. F. Wang *et.al* は、 Er^{3+} にモル比で10倍の濃度の Al^{3+} を共添加させることでクラスターの形成を抑制し、シリカガラスファイバーでリン酸ガラスファイバーと同等の共振器長46 mm を実現させているが、CW発振であった[45]. H. Byun *et.al* は Er^{3+} 添加シリカファイバーを用いて、共振器長102 mm, 繰り返し周波数967 MHzを実現している[31]. ほかにも、 Yb^{3+} で0.49 GHz [46], Nd^{3+} で50 MHz [47] を実現した例はあるが、筆者の知りうる限り、基本モードの繰り返し周波数がGHzを超えるシリカガラスファイバーレーザーはこれまでに存在しない.

1.6. ゼオライト法

ゼオライトはアルミノケイ酸塩の一種であり、周期的な微細孔構造を有する結晶の総称である. ゼオライト X は、Fig. 1-10(a)と(b)に示した構造を有し、Al の数だけ構造は負に帯電している. この電荷は、S1~S5 で示したイオン吸着サイトに陽イオンを吸着して相殺させている. ゼオライト X 中の S5 にのみ Nd^{3+} を吸着させることで、 Nd^{3+} - Nd^{3+} 間距離は 0.88 nm へ効果的に隔離させることができる. ゼオライト法[48]は、このゼオライト X を用いてシリカガラスを形成することで、 Nd^{3+} - Nd^{3+} を隔離してクラスターの形成を抑制し、 Nd^{3+} の高濃度添加を実現させる手法である. 実際、藤本らは、ゼオライト法により Nd^{3+} を 1.0 wt.%添加したシリカガラスにおいて、量子収率 50% を実現している[48]. 今までに、ゼオライト法を用いた Nd^{3+} 高濃度添加シリカガラスファイバーレーザーでは、共振器長 50 mm [53]と 4 mm [54]を達成している. これらの先行研究で用いたファイバーは、コア径がそれぞれ 66 μm , 12 μm と大きく、マルチモード動作をしていた. 過去にコア径を 6 μm 程度にした SMF の作製が試みられた[55]が、ファイバーのコア径が安定しない問題があった. パルス発振を実現するために、半導体可飽和吸収ミラー (Semiconductor Saturable Absorber Mirror : SESAM) をモードロッカーとして使用する場合、モードロック動作の実現には、SESAM への入射エネルギー密度が飽和フルエンスと呼ばれる閾値を超える必要がある. それゆえ、長さ 100 mm 以下でレーザー発振可能なシングルモードファイバーが必要となる.

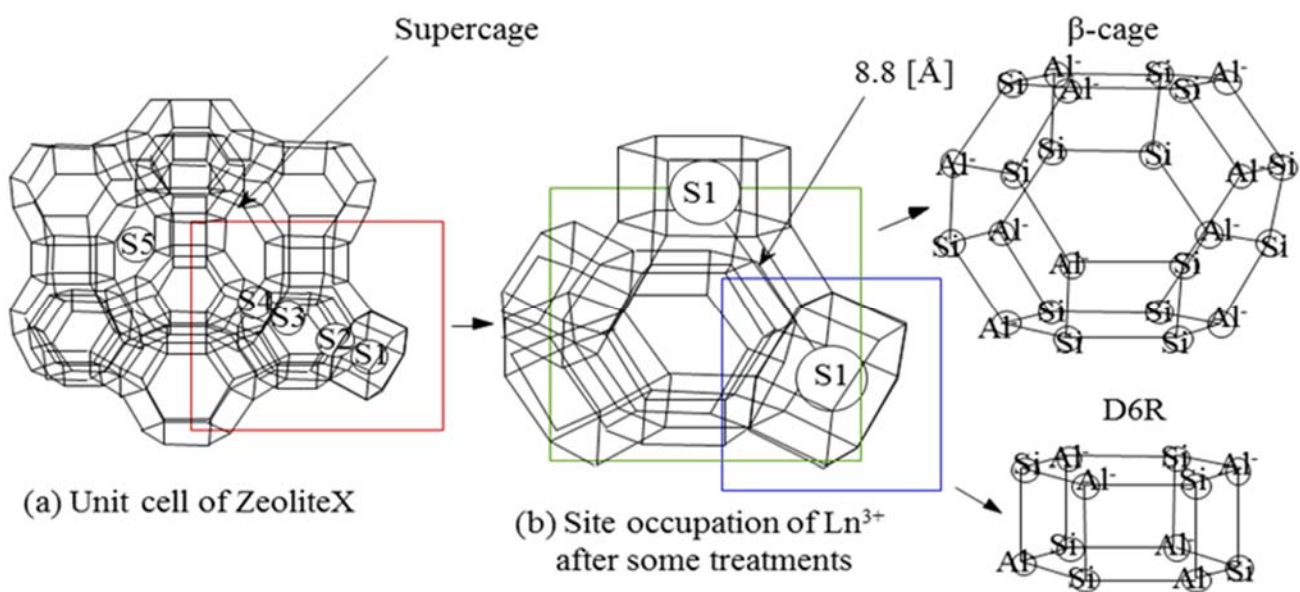


Fig. 1-10 (a) Zeolite X 基本構造. S1~S5 はイオン吸着サイトを表す. (b)置換したランタノイドイオン Ln^{3+} の Zeolite X 中の隔離距離. [48]

Table 1-5 ゼオライト法により添加実績のある希土類イオンと、実施された先行研究の一覧。

希土類イオン	レーザー特性		レーザー動作	先行研究		
	励起波長	発振波長		光学特性	CWレーザー	パルスレーザー
Nd^{3+}	808 nm	1060 nm	4準位系	有 [48]	MMF コア径：66 μm [53] コア径：12 μm [54] SMF 作製事例あり [55]	なし
Yb^{3+}	980 nm	1040 nm	疑3準位系	なし	アンプ [56] MMF コア径：8.7 μm [57]	なし
Er^{3+}	980 nm	1550 nm	3準位系	なし	なし	なし

1.7. 本研究の目的

本研究では、ゼオライト法によりシリカファイバーを作製し、高繰り返しパルスレーザーの実現を目指した。希土類イオンの中でも、 Nd^{3+} イオンは4準位系のレーザー発振を実現できることから、そのレーザー発振閾値は低い。このため、可飽和吸収体を用いたモード同期の実現も、3準位系の Yb^{3+} 、 Er^{3+} と比較してより低出力なレーザーで実現できる可能性が高く、熱に弱い可飽和吸収体にとって非常に有利となる。実際、Table 1-5に記載したCWレーザーのレーザー発振閾値は、 Yb^{3+} における115 mW[57]に対し、 Nd^{3+} のそれは7.7 mW[54]まで低下している。そこで、近年研究事例の少なかった、 Nd^{3+} イオンを添加したシリカガラスシングルモードファイバー(Nd-SMF)を用いて短尺共振器レーザー(Nd-SMFレーザー)を作製し、波長1060 nm帯で数GHz以上のパルス列を得る事を目指す。

一方短尺共振器レーザーは、ファイバーの使用量が少なく、レーザー自体の小型化・量産性向上といった優位点も有している。これまでゼオライト法は、波長1.0 μm 帯で発振する Nd^{3+} イオンと Yb^{3+} イオンの高濃度添加シリカガラスしか作製例がない。 Er^{3+} イオンは目に安全な波長1.55 μm 帯で発振するため、ゼオライト法を Er^{3+} イオンにも拡張できると、その応用はさらなる広がり期待できる。そこで、 Er^{3+} イオンを高濃度添加したシリカガラス(ErZSG)を作製してその光学特性を明らかにし、波長1.55 μm 帯の短尺共振器レーザーの構築可能性を明らかにする。

以上から、以下の三点を本研究の目的とした。

- ①ゼオライト法により作製した Nd^{3+} 高濃度添加シリカを用いて、シングルモードファイバー(Nd doped Silica Glass Single-mode Fiber)を作製し、共振器長100mm以下の短尺共振器でCW発振を実現させること。
- ②共振器長100mm以下の短尺共振器で受動モードロックによるパルス発振を実現し、シリカファイバーレーザーで1 GHzをこえる繰り返し周波数をえること。
- ③ Nd^{3+} 、 Yb^{3+} 以外の希土類イオンである Er^{3+} にもゼオライト法を拡張させること。

1.8. 参考文献

- [1] 一般財団法人光産業技術振興協会, 2018 (平成 30) 年度光産業全出荷額、国内生産額調査結果について, (2019).
- [2] (社)レーザー学会・ファイバーレーザー技術専門委員会, ファイバーレーザー技術ロードマップ (案), (2019).
- [3] E. Snitzer, Optical Maser Action of Nd^{3+} in a Barium Crown Glass, Physical Review Letters, 7 (1961) 444-446.
- [4] L. Reekie, I.M. Jauncey, S.B. Poole, D.N. Payne, Diode-laser-pumped operation of an Er^{3+} -doped single-mode fibre laser, Electronics Letters, 23 (1987) 1076-1078.
- [5] M. Nakazawa, Y. Kimura, K. Suzuki, Efficient Er^{3+} -doped optical fiber amplifier pumped by a 1.48

- μ m InGaAsP laser diode, *Applied physics letters*, 54 (1989) 295-297.
- [6] D. Hanna, R. Percival, I. Perry, R. Smart, P. Suni, J. Townsend, A. Tropper, Continuous-wave oscillation of a monomode ytterbium-doped fibre laser, *Electronics Letters*, 24 (1988) 1111-1113.
- [7] S.D. Jackson, T. King, High-power diode-cladding-pumped Tm-doped silica fiber laser, *Opt Lett*, 23 (1998) 1462-1464.
- [8] D.M. Baney, G. Rankin, K.W. Chang, Blue Pr(3+)-doped ZBLAN fiber upconversion laser, *Opt Lett*, 21 (1996) 1372-1374.
- [9] I.A. Bufetov, S.V. Firstov, V.F. Khopin, O.I. Medvedkov, A.N. Guryanov, E.M. Dianov, Bi-doped fiber lasers and amplifiers for a spectral region of 1300-1470 nm, *Opt Lett*, 33 (2008) 2227-2229.
- [10] Y. Fujimoto, M. Nakatsuka, Infrared Luminescence from Bismuth-Doped Silica Glass, *Japanese Journal of Applied Physics*, 40 (2001) L279-L281.
- [11] N. Thipparapu, Y. Wang, S. Wang, A. Umnikov, P. Barua, J. Sahu, Bi-doped fiber amplifiers and lasers, *Opt. Mater. Express*, 9 (2019) 2446-2465.
- [12] B. Gross, J.T. Manassah, Supercontinuum in the anomalous group-velocity dispersion region, *JOSA B*, 9 (1992) 1813-1818.
- [13] J.W. Nicholson, M.F. Yan, P. Wisk, J. Fleming, F. DiMarcello, E. Monberg, A. Yablon, C. Jorgensen, T. Veng, All-fiber, octave-spanning supercontinuum, *Opt Lett*, 28 (2003) 643-645.
- [14] R.H. Stolen, E. Ippen, A. Tynes, Raman oscillation in glass optical waveguide, *Applied Physics Letters*, 20 (1972) 62-64.
- [15] Y. Fujimoto, M. Nakahara, P. Binun, S. Motokoshi, O. Ishii, M. Watanabe, M. Yamazaki, T. Shinozaki, T. Sato, Y. Yanomori, W single-mode visible laser oscillation in Pr-doped double-clad structured waterproof fluoro-aluminate glass fiber, in: *The European Conference on Lasers and Electro-Optics*, Optical Society of America, 2019, pp. cj_p_34.
- [16] L.G. Cohen, Power Coupling from GaAs Injection Lasers into Optical Fibers, *Bell System Technical Journal*, 51 (1972) 573-594.
- [17] D. Kato, Light coupling from a stripe - geometry GaAs diode laser into an optical fiber with spherical end, *Journal of Applied Physics*, 44 (1973) 2756-2758.
- [18] E. Snitzer, H. Po, F. Hakimi, R. Tumminelli, B. McCollum, Double clad, offset core Nd fiber laser, in: *Optical fiber sensors*, Optical Society of America, 1988, pp. PD5.
- [19] 吉田英次, 椿本孝治, 藤田尚徳, 宮永憲明, 山村健, 酒川友一, 塚本雅弘, 藤崎晃, 大口径ファイバーを用いた高出力パルス Yb ファイバーレーザー, *光学*, 42 (2013) 459-465.
- [20] K. Tsubakimoto, H. Yoshida, N. Miyanaga, 600 W green and 300 W UV light generated from an eight-beam, sub-nanosecond fiber laser system, *Opt Lett*, 42 (2017) 3255-3258.
- [21] P. Dupriez, A. Piper, A. Malinowski, J. Sahu, M. Ibsen, B. Thomsen, Y. Jeong, L. Hickey, M. Zervas, J. Nilsson, High average power, high repetition rate, picosecond pulsed fiber master oscillator power amplifier source seeded by a gain-switched laser diode at 1060 nm, *IEEE Photonics Technology Letters*, 18 (2006) 1013-1015.
- [22] J.A. Alvarez-Chavez, H.L. Offerhaus, J. Nilsson, P.W. Turner, W.A. Clarkson, D.J. Richardson, High-

energy, high-power ytterbium-doped Q-switched fiber laser, *Opt. Lett.*, 25 (2000) 37-39.

[23] S. Kajikawa, M. Yoshida, S. Motokoshi, O. Ishii, M. Yamazaki, Y. Fujimoto, Visible ns-pulse laser oscillation in Pr-doped double-clad structured waterproof fluoride glass fibre with SESAM, *The Journal of Engineering*, 2017 (2017) 407-409.

[24] C. Kerse, H. Kalaycıoğlu, P. Elahi, Ö. Akçaalan, F.Ö. Ilday, 3.5-GHz intra-burst repetition rate ultrafast Yb-doped fiber laser, *Optics Communications*, 366 (2016) 404-409.

[25] S. Zhou, D.G. Ouzounov, F.W. Wise, Passive harmonic mode-locking of a soliton Yb fiber laser at repetition rates to 1.5 GHz, *Opt Lett*, 31 (2006) 1041-1043.

[26] B. Ortaç, A. Hideur, G. Martel, M. Brunel, 2-GHz passive harmonically mode-locked Yb-doped double-clad fiber laser, *Applied Physics B*, 81 (2005) 507-509.

[27] V.P. Kalosha, R. Vallée, L. Chen, M. Piché, P. Mascher, X. Bao, P. Cheben, D. Côté, S. LaRochelle, H.P. Schriemer, J. Albert, T. Ozaki, Feasibility of Kerr-lens mode locking in fiber lasers, in: *Photonics North 2008*, 2008.

[28] Y. Zhou, W. Lin, H. Cheng, W. Wang, T. Qiao, Q. Qian, S. Xu, Z. Yang, Composite filtering effect in a SESAM mode-locked fiber laser with a 3.2-GHz fundamental repetition rate: switchable states from single soliton to pulse bunch, *Opt Express*, 26 (2018) 10842-10857.

[29] H. Cheng, W. Wang, Y. Zhou, T. Qiao, W. Lin, S. Xu, Z. Yang, 5 GHz fundamental repetition rate, wavelength tunable, all-fiber passively mode-locked Yb-fiber laser, *Opt Express*, 25 (2017) 27646-27651.

[30] A. Martinez, S. Yamashita, Multi-gigahertz repetition rate passively modelocked fiber lasers using carbon nanotubes, *Opt Express*, 19 (2011) 6155-6163.

[31] H. Byun, M.Y. Sander, A. Motamedi, H. Shen, G.S. Petrich, L.A. Kolodziejwski, E.P. Ippen, F.X. Kartner, Compact, stable 1 GHz femtosecond Er-doped fiber lasers, *Appl Opt*, 49 (2010) 5577-5582.

[32] E. Shcherbakov, V. Fomin, A. Abramov, A. Ferin, D. Mochalov, V.P. Gapontsev, Industrial grade 100 kW power CW fiber laser, in: *Advanced Solid State Lasers*, Optical Society of America, 2013, pp. ATH4A.2.

[33] S. Hakobyan, V.J. Wittwer, P. Brochard, K. Gurel, S. Schilt, A.S. Mayer, U. Keller, T. Sudmeyer, Full stabilization and characterization of an optical frequency comb from a diode-pumped solid-state laser with GHz repetition rate, *Opt Express*, 25 (2017) 20437-20453.

[34] R.A. McCracken, J.M. Charsley, D.T. Reid, A decade of astrocombs: recent advances in frequency combs for astronomy [Invited], *Opt. Express*, 25 (2017) 15058-15078.

[35] A. Bartels, D. Heinecke, S.A. Diddams, 10-GHz Self-Referenced Optical Frequency Comb, *Science*, 326 (2009) 681-681.

[36] C. Li, N. Krauss, G. Schafer, L. Ebner, O. Kliebisch, J. Schmidt, S. Winnerl, M. Hettich, T. Dekorsy, High-speed asynchronous optical sampling based on GHz Yb:KYW oscillators, *Opt Express*, 25 (2017) 9204-9212.

[37] S. Liu, X. Wu, D. Jung, J.C. Norman, M.J. Kennedy, H.K. Tsang, A.C. Gossard, J.E. Bowers, High-channel-count 20 GHz passively mode-locked quantum dot laser directly grown on Si with 41 Tbit/s transmission capacity, *Optica*, 6 (2019).

- [38] 藤田雅之, 短パルスレーザーを用いた炭素繊維強化複合材の微細加工技術の開発, FORM TECH REVIEW, 27 (2017) 89-94.
- [39] A. Narazaki, H. Takada, D. Yoshitomi, K. Torizuka, Y. Kobayashi, Study on nonthermal-thermal processing boundary in drilling of ceramics using ultrashort pulse laser system with variable parameters over a wide range, Applied Physics A, 126 (2020) 1-8.
- [40] A. Narazaki, J. Nishinaga, H. Takada, T. Sato, H. Niino, K. Torizuka, Y. Kamikawa-Shimizu, S. Ishizuka, H. Shibata, S. Niki, Evaluation of femtosecond laser-scribed Cu(In,Ga)Se₂ solar cells using scanning spreading resistance microscopy, Applied Physics Express, 11 (2018) 032301.
- [41] C. Kerse, H. Kalaycioglu, P. Elahi, B. Cetin, D.K. Kesim, O. Akcaalan, S. Yavas, M.D. Asik, B. Oktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, F.O. Ilday, Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses, Nature, 537 (2016) 84-88.
- [42] H. Lim, F. Ilday, F. Wise, Generation of 2-nJ pulses from a femtosecond ytterbium fiber laser, Opt. Lett., 28 (2003) 660-662.
- [43] S. Kimura, S. Tani, Y. Kobayashi, Kerr-lens mode locking above a 20 GHz repetition rate, Optica, 6 (2019).
- [44] M. Endo, I. Ito, Y. Kobayashi, Direct 15-GHz mode-spacing optical frequency comb with a Kerr-lens mode-locked Yb:Y(2)O(3) ceramic laser, Opt Express, 23 (2015) 1276-1282.
- [45] F. Wang, Z. Lin, C. Shao, Q. Zhou, L. Zhang, M. Wang, D. Chen, G. Gao, S. Wang, C. Yu, L. Hu, Centimeter-scale Yb-free heavily Er-doped silica fiber laser, Opt Lett, 43 (2018) 2356-2359.
- [46] J. Liu, J. Xu, P. Wang, High Repetition-Rate Narrow Bandwidth SESAM Mode-Locked Yb-Doped Fiber Lasers, IEEE Photonics Technology Letters, 24 (2012) 539-541.
- [47] M.H. Ober, M. Hofer, U. Keller, T.H. Chiu, Self-starting, diode-pumped femtosecond Nd fiber laser, Opt Lett, 18 (1993) 1532.
- [48] Y. Fujimoto, M. Nakatsuka, A novel method for uniform dispersion of the rare earth ions in SiO₂ glass using zeolite X, Journal of Non-Crystalline Solids, 215 (1997) 182-191.
- [49] O. Sinanoğlu, Modern quantum chemistry: Istanbul lectures, Academic Press, 1965.
- [50] W.J. Miniscalco, Erbium-doped glasses for fiber amplifiers at 1500 nm, Journal of Lightwave Technology, 9 (1991) 234-250.
- [51] R.S. Quimby, W.J. Miniscalco, B. Thompson, Clustering in erbium - doped silica glass fibers analyzed using 980 nm excited - state absorption, Journal of Applied Physics, 76 (1994) 4472-4478.
- [52] V. McGahay, M. Tomozawa, Phase separation in rare-earth-doped SiO₂ glasses, Journal of Non-Crystalline Solids, 159 (1993) 246-252.
- [53] M. Murakami, M. Yoshida, H. Nakano, Y. Fujimoto, H. Shiraga, S. Motokoshi, S. Matsuoka, J. Maeda, H. Kan, Laser oscillation in 5-cm Nd-doped silica fiber fabricated by zeolite method, Journal of Non-Crystalline Solids, 357 (2011) 963-965.
- [54] M. Murakami, Y. Fujimoto, S. Motokoshi, T. Sato, H. Shiraga, Short-length fiber laser oscillation in 4-mm Nd-doped silica fiber fabricated by zeolite method, Optics Communications, 328 (2014) 121-123.
- [55] 村上元一郎, 近畿大学大学院理工学研究科電気電子工学専攻博士前期課程論文, (2011).

[56] Y. Sakaguchi, Y. Fujimoto, M. Masuda, N. Miyanaga, H. Nakano, Suppression of photo-darkening effect in Yb-doped silica glass fiber by co-doping of group 2 element, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 440 (2016) 85-89.

[57] Y. Sakaguchi, Y. Fujimoto, N. Miyanaga, H. Nakano, Laser oscillation in low photo-darkening Yb-doped silica glass fiber by co-doping of group-2 element, in: *2016 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*, 2016, pp. 1-2.

第2章 シリカガラスファイバーを用いた短尺共振器 CW レーザーの開発と発振検証

本章では、Nd³⁺高濃度添加シングルモードシリカガラスファイバー (Nd-SMF) の作製方法とその特性評価方法について示した後、Nd-SMF を用いて共振器長 40 mm のファブリペロー型レーザーを提案し、実際に CW 発振するか検証・評価を行い、その特性を議論する。

2.1. ファイバーの作製と評価方法

2.1.1 設計方法

本研究では、既報[1]でゼオライト法により作製された、Nd₂O₃ の添加濃度 1.25 wt.% である Nd³⁺ 高濃度添加シリカガラス (Nd-ZSG) を用いた。なお、ゼオライト法によるガラス作製の詳細は、ErZSG の項で詳述する。Nd³⁺ の蛍光ピーク波長、1.060 μm における屈折率は NdZSG が 1.4545、溶解シリカが 1.4499 であることが分かっている[2]。それぞれを光ファイバーのコアとクラッドに使用するため、以降はこれらの屈折率をそれぞれ n_{core} と n_{clad} 表記する。ファイバーがシングルモードファイバー(SMF)であるか否かは、V パラメータを用いて判断することができる。

$$V = \frac{\pi D \sqrt{n_{\text{core}}^2 - n_{\text{clad}}^2}}{\lambda} \quad \text{式 2-1}$$

ここで、 D はファイバーのコア径、 λ は伝搬させる光の波長である。伝搬させる波長とファイバーの組み合わせから式 2-1 を用いて V パラメータを計算し、2.401 以下であればそのファイバーは SMF として動作する (式 2-2)。

$$\frac{\pi D \sqrt{n_{\text{core}}^2 - n_{\text{clad}}^2}}{\lambda} \leq 2.401 \quad \text{式 2-2}$$

今、 $\lambda = 1.060 \mu\text{m}$ とすると、式 2-2 は次式のようにになる。

$$D \leq 7.0 [\mu\text{m}] \quad \text{式 2-3}$$

ファイバーの母材となるプリフォームの作製時、コア径は±10 %程度の製造誤差が想定される。そこで設計の目標値は $D = 6.0 \mu\text{m}$ とした。また、ファイバーのクラッド径は、125 μm を設計値と

した。これは、現在流通している光ファイバーのクラッド径のうち大部分は 125 μm であり、被覆除去、切断、融着などのファイバー取り扱い工具及びコネクタなどのファイバー素子は、ほとんどが外径 125 μm のファイバー用に設計されているからである。なお、ファイバーの波長 1.060 μm における NA は、 $\sqrt{n_{\text{core}}^2 - n_{\text{clad}}^2} = 0.116$ と予想される。

2.1.2 作製方法

光ファイバーは、母材となるプリフォームを細径化して作製する。これをファイバーの線引きという。線引きの前後で、プリフォームとファイバーのコア・クラッド径比は変化しない。したがって、所望のコア径のファイバーを得るには、プリフォームの作製精度を高くする必要がある。プリフォームと光ファイバーは、外径とコア径の比率が相似になる。そこで、プリフォームの外径とコア径の作製目標は Table 2-1 に示した値とした。

Table 2-1 ファイバー及びプリフォームの設計値。

	ファイバー	プリフォーム①	プリフォーム②	比率
コア径	φ 6.0 μm	φ 0.60 mm	φ 0.96 mm	1
外径	φ 125 μm	φ 12.5 mm	φ 20.0 mm	21

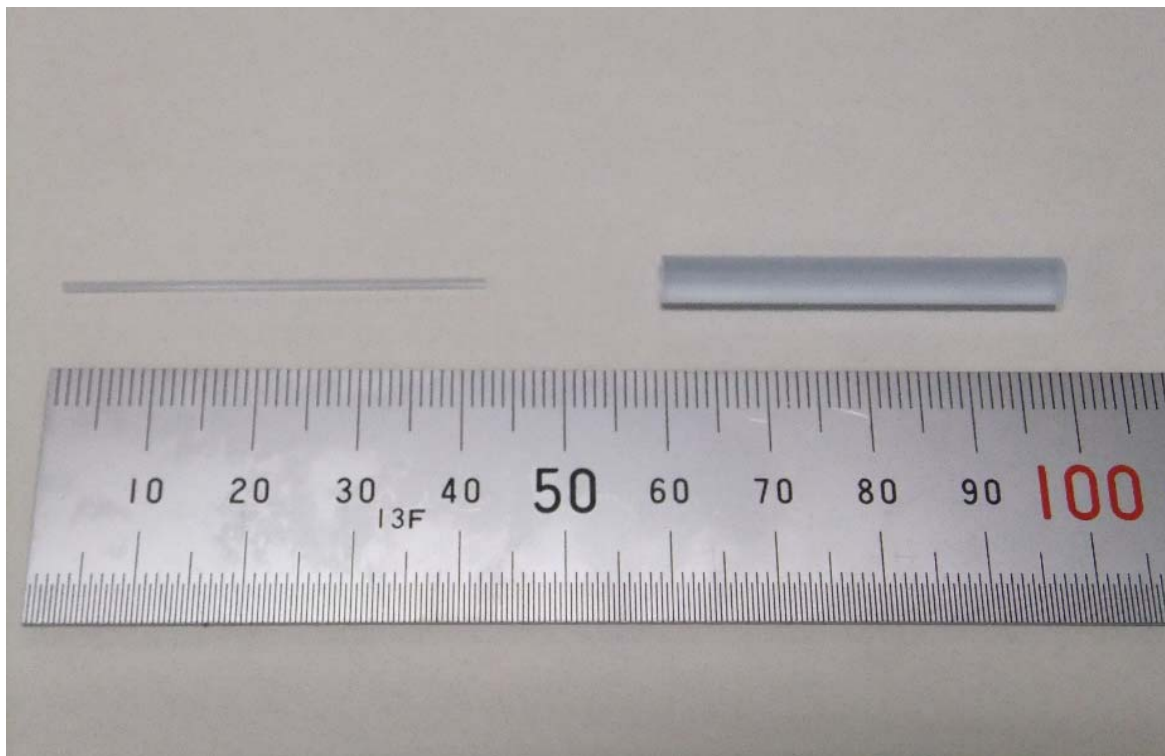


Fig. 2-1 コアの母材に用いた Nd-ZSG ロッド。

プリフォームは、ロッドインチューブ法により作製した。ロッドインチューブ法では、ファイバーのコアとなるロッドを、クラッドとなる石英管で覆ってプリフォームを形成する。1.6において紹介した、ゼオライト法の先行研究では、後述する光ファイバー線引き装置の紡糸炉にこれらを挿入して、一体化を行っていた。シリカガラスの融点は 1800 °C 周辺にあることから、線引き装置の紡糸炉温度を 1750 °C 一定に保持し、石英管と Nd-ZSG ロッドを完全に一体化させていた[3]。Fig. 2-2 に、石英管（外径： $\phi 9$ mm，内径： $\phi 5$ mm）に合わせ $\phi 4.8$ mm，長さ 40 mm の Nd-ZSG ロッドを挿入し、作製したプリフォームの作製例を示す[3]。



Fig. 2-2 先行研究で作製された、紡糸炉を用いたプリフォーム一体化の例[3]。

シングルモードファイバーの場合、Table 2-1 に示した比率のプリフォームを作製する必要がある。プリフォーム②の設計の場合、 $\phi 0.96$ mm の Nd-ZSG ロッドを、内径 $\phi 1$ mm-外径 $\phi 20$ mm の超肉厚間に挿入する必要があるが、一般にそのような肉厚管は作製されておらず、入手できない。そこで、先行研究では、紡糸炉における一体化を複数回実施することで、プリフォームを形成させた[3]。しかしながら、石英管を多重化させると、石英管間の空隙が径の不安定やファイバーの断線を引き起こす問題があった。実際、著者がその際に作製されたシングルモードファイバーの断面を光学顕微鏡で観察したところ、ある破断面では存在していたコアが (Fig. 2-3 (a))、約 50 cm 離れた位置では確認できず (Fig. 2-3 (b))、作製できたファイバーの品質は悪かった。

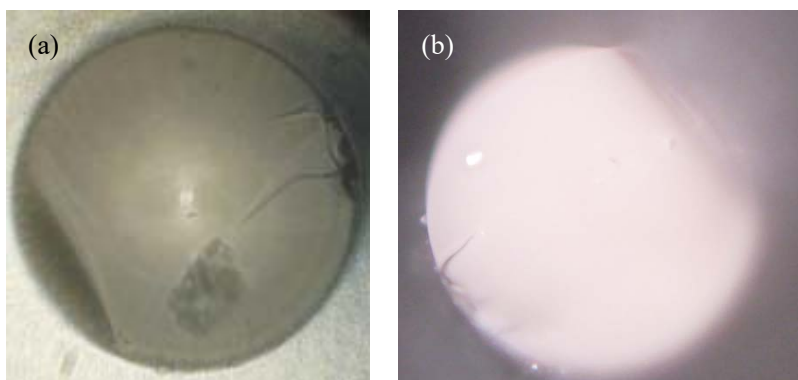


Fig. 2-3 (a) 先行研究で作製されたシングルモードファイバーの断面。光学顕微鏡で観察した。(b) (a)から約 50 cm 離れた箇所断面。コアが確認できない。

本研究では、ファイバーを安定的に作製するため、プリフォームの形成にはガラス旋盤を使用することとした。ガラス旋盤は、ガラスロッドやガラス管を回転させながら酸水素炎に晒し、これらを熔融できる装置である。ガラス管を熔融させると、その表面張力によって径は縮小するため、ロッドへのジャケット加工が可能である（ジャケット加工：Fig. 2-4 (a), (b), (c)）。また、長手方向へガラスロッドを引っ張りながら、加熱することで、ロッドを自由に延伸させることもできる（Fig. 2-4 (d)）。このように、ガラス旋盤を用いることで、所望のコア径・クラッド径を有するプリフォームの作製が可能となった。

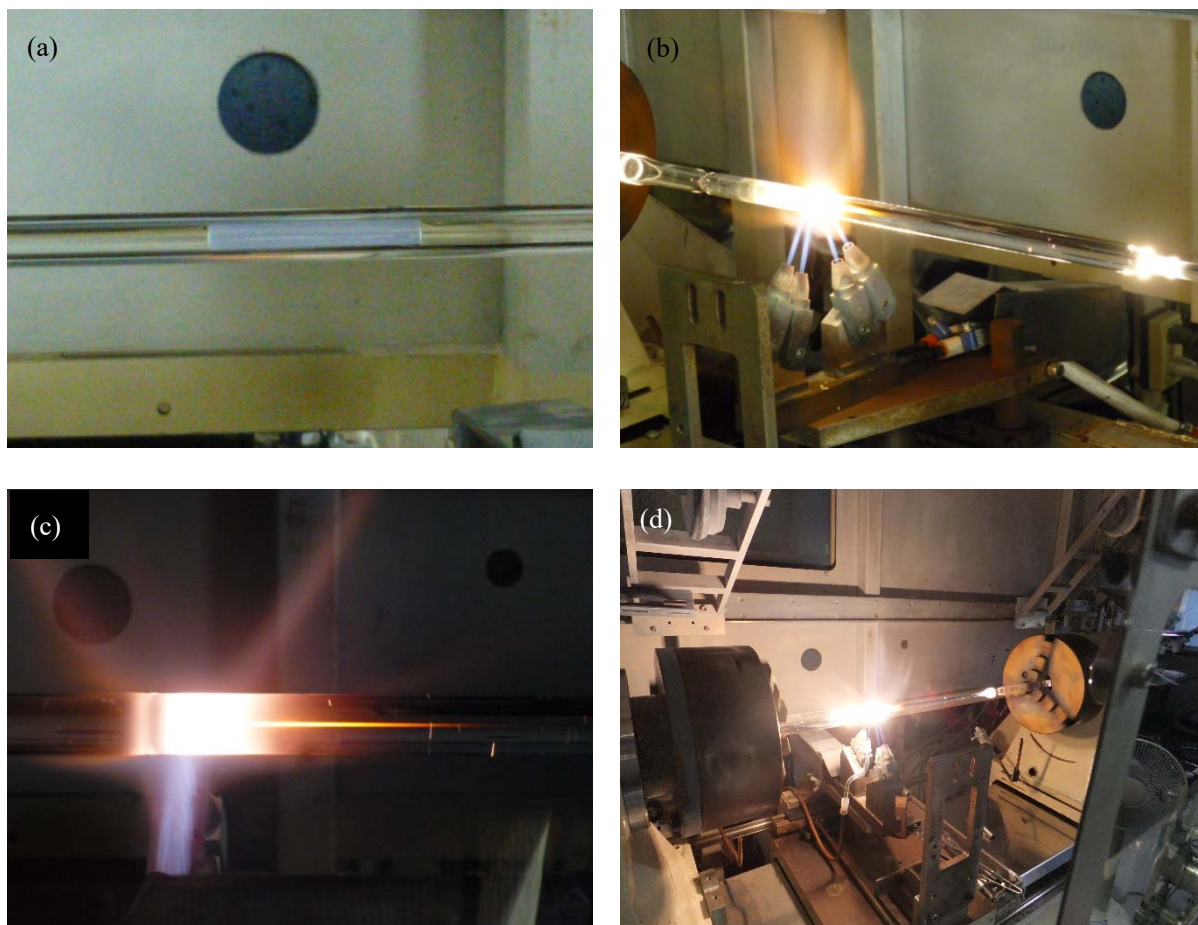


Fig. 2-4 (a) コアとなる Nd-ZSG ロッドとクラッドとなる石英管。 (b) ジャケット加工により、コアロッドとクラッドとなる管を覆い、一体化させている様子。 (c) ジャケット加工時のプリフォームを拡大した様子。写真では、コアが熱励起により橙色に光っている。 (d) プリフォーム延伸の様子。プリフォームを回転させながら、図右側のチャックと酸水素炎を右方向へ動かすことで、プリフォーム延伸できる。

ファイバーの線引きは、大阪大学レーザー科学研究所が所有する光ファイバー線引き装置を用いて行った。その装置概略図及び写真を Fig. 2-5 に示す。以下に、線引き作業手順を記載する。

光ファイバーの線引き手順

- (1) プリフォームを装置上方のプリフォーム移動機構に取り付ける。
- (2) カーボン製の紡糸炉内は、酸化を防止するために、高純度アルゴンガスを流して不活性雰囲気にする。冷却水として市水を循環させる。これらの流量は規定値になるよう適切に調整し、線引き装置制御装置の電源を投入する。
- (3) プリフォームをプリフォーム移動機構で上下に移動させ、プリフォームの下端から約 10 cm 上方の位置と、加熱炉の加熱領域中心位置が一致するようにする。
- (4) 放射温度計 (CHINO, IR-CAS) で紡糸炉の温度を計測しながら、紡糸炉に電流を印加する。
- (5) 熔融したプリフォームが、自重により垂れ下がり始める (= ネックダウン) と紡糸炉の温度を一定にする。紡糸炉の下部から、プリフォームが細径化してできたファイバーを引き出す。
- (6) プリフォーム移動機構によりプリフォームを一定速度で紡糸炉に挿入する。ファイバーはキャプスタンにはさんで引き取る。ファイバーの外径が安定するように、紡糸炉の温度を下げる。この時、ファイバーの外径は、非接触のレーザー外径測定器 (東京港電子工業株式会社) により随時監視・計測する。
- (7) ファイバーの外径が 125 μm となるように、ファイバーの引き取り速度とプリフォームの挿入速度を調整する。
- (8) ファイバー径が 125 μm で安定した後、紫外線硬化樹脂 (レジン) をじょうご状のダイスに充填する。ダイス内を通過させることで、ファイバーに樹脂は塗布され、さらに紫外線が照射されて硬化し、ファイバーの被覆となる。ファイバーの片端はボビンに固定して巻きとりを行う。
- (9) 十分な長さのファイバーが採取できれば紡糸炉への電流印加を停止させて、ファイバー線引きを終了させる。
- (10) ボビンに巻き付けられたファイバーを得る (Fig. 2-6)。

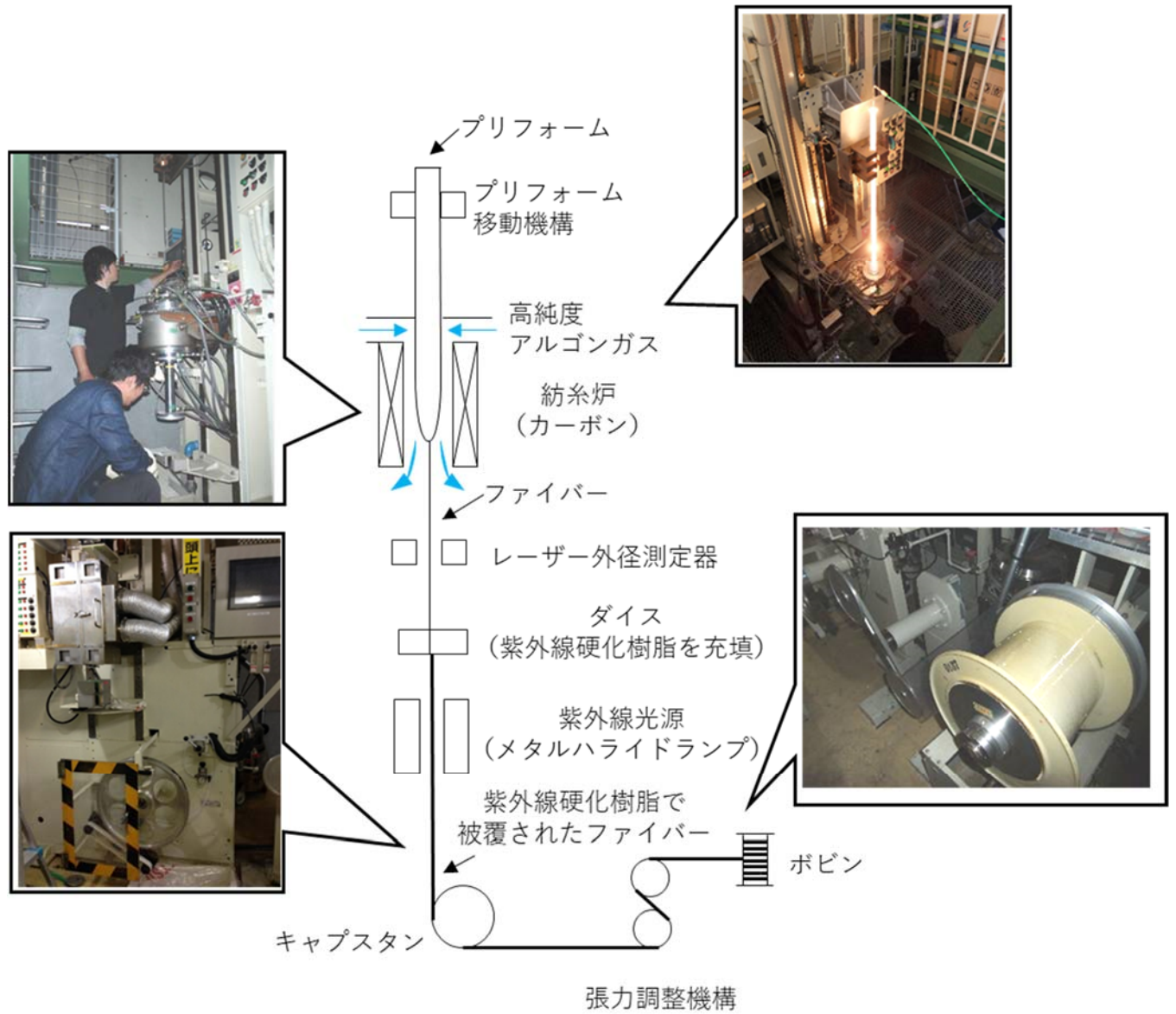


Fig. 2-5 光ファイバー線引き装置の概略図と写真

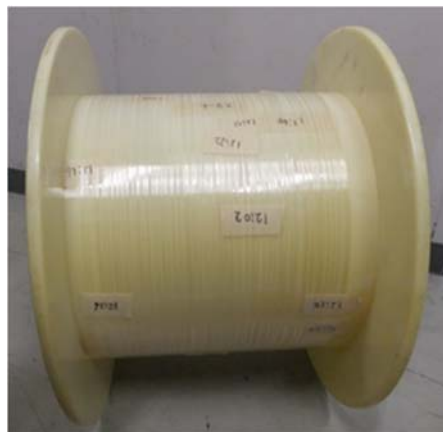


Fig. 2-6 ポビンに巻き付けられたファイバーの一例.

2.1.3 特性評価方法

線引きしたファイバーは破断して、その断面を走査電子顕微鏡 (=SEM, 日立ハイテクノロジー: TM3030) で観察した。断面の SEM 像から、ファイバーのコア径とクラッド径を求めた。

Nd³⁺は波長 0.808 μm で励起され、波長 1.06 μm にレーザー発振ピークを有する。ファイバーレーザーを構築するにあたって、Nd-SMF の両波長における吸収係数は共振器長を決定する際の重要な指標となる。そこで、0.808 μm と 1.064 μm における Nd-SMF の吸収係数を、カットバック法により計測した。Fig. 2-7 に、カットバック法による Nd-SMF の透過率計測の様子を示す。SMF 出力の LD、波長 0.808 μm (Thorlabs, FPL808S) と波長 1.064 μm (QPHOTONICS, QFBGLD-1060-100) を計測用の光源に用いた。SMF と Nd-SMF はファイバー融着機 (フジクラ, FSM-100P) を用いてそれぞれ融着した。Nd-SMF の長さ l における透過スペクトルを、光スペクトラムアナライザ (Yokogawa, AQ6370D) を用いて計測し、0.808 μm と 1.064 μm におけるピーク強度の l 依存性 $I_{0.808\mu\text{m},1.064\mu\text{m}}(l)$ を得た。

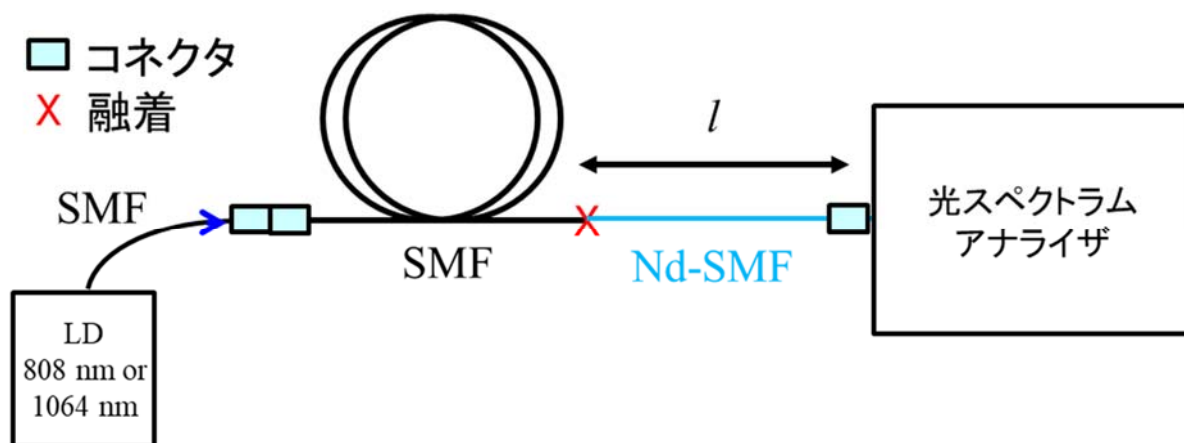


Fig. 2-7 カットバック法による Nd-SMF の透過率計測の様子

Nd-SMF の 0.808 μm と 1.064 μm における吸収係数 ($= \alpha_{0.808\mu\text{m},1.064\mu\text{m}}$) は、式 2-4 によって求めた。

$$\alpha_{0.808\mu\text{m},1.064\mu\text{m}} = -\frac{1}{l} \ln \frac{I_{0.808\mu\text{m},1.064\mu\text{m}}(l)}{I_0} \quad \text{式 2-4}$$

I_0 は、 $I_{0.808\mu\text{m},1.064\mu\text{m}}(l = 0)$ である。

0.808 μm の LD (Thorlabs, FPL808S) によって Nd-SMF を励起し、波長 1.06 μm の蛍光ビームプロファイラを、ビームプロファイラ (Spiricon, SP620U) を用いて計測した。プロファイラには CCD 受光面があり、そのサイズは 1 ピクセル $\square 4.4 \mu\text{m}$ である。Nd-SMF はコア径が 5.5 μm であるため、ビームプロファイラの前面に、メーカー指定のレンズと鏡筒を組付けて 22 倍に拡大投影し、1 ピクセルが $\square 0.2 \mu\text{m}$ となった像を取得した。残留する励起光を除去するために、ロングパスフィルタ (Thorlabs, FELH1000) をビームプロファイラの前に設置した。Fig. 2-8 に実験時の光学配置と、Fig. 2-9 に実験時の様子を示す。計測した x 軸と y 軸方向のビームプロファイルは、ガウシアンを用いて近似し、 $1/e^2$ ビーム径を MFD_{meas} として求めた。

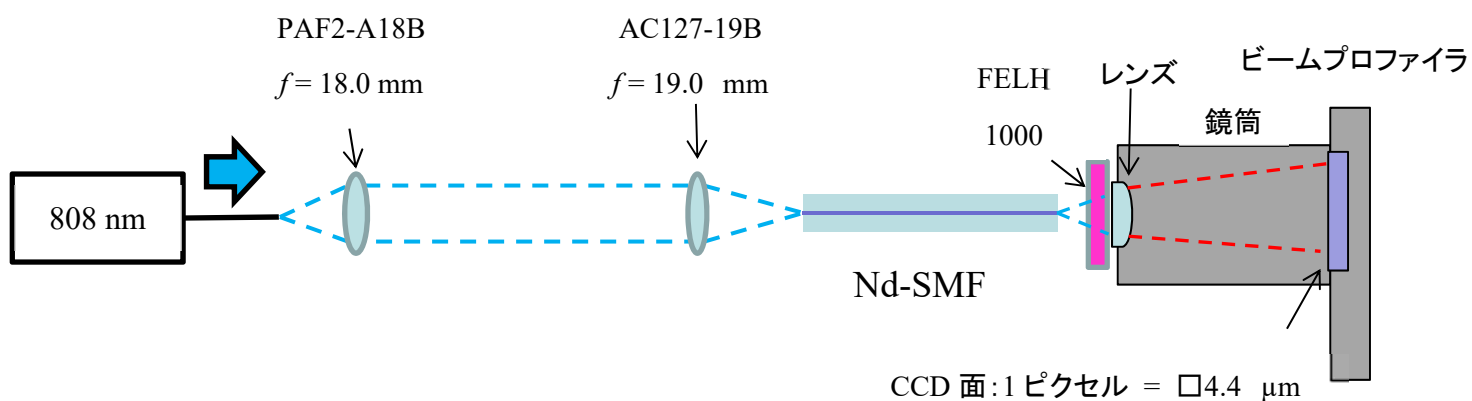


Fig. 2-8 Nd-SMF のモードフィールド径 (MFD_{meas}) 計測した際の光学系。

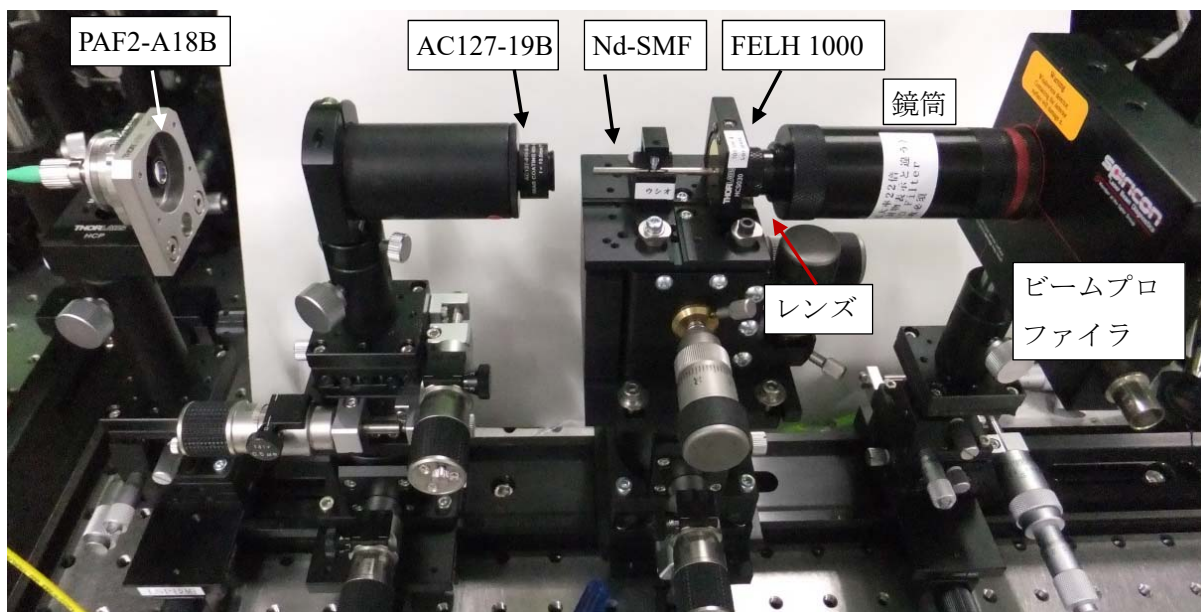


Fig. 2-9 Nd-SMF のモードフィールド径 (MFD_{meas}) 計測している様子の写真。

2.1.4 ファイバーの導波路シミュレーション方法

光ファイバーの導波路解析を、ビーム伝搬法 (R-soft, BeamPROP) によって実施した。BPM 法は、①光の伝搬方向は1軸方向 (z 軸方向) ②反射波は無視できるくらいに小さい という2つの仮定が成り立つ場合に適用可能な計算手法である。

光の伝搬現象は \mathbf{E} (電場), \mathbf{D} (電束密度), \mathbf{H} (磁場), \mathbf{B} (磁束密度) のベクトルを用いた Maxwell 方程式, 式 2-5 と式 2-6 で記述される。

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad \text{式 2-5}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad \text{式 2-6}$$

また誘電体中では、以下の関係が成り立つ。

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 n^2 \mathbf{E} \quad \text{式 2-7}$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} \quad \text{式 2-8}$$

ここで, ϵ_0 , μ_0 はそれぞれ真空の誘電率と透磁率, n は誘電体の屈折率を示す。式 2-5 の両辺に ∇ を掛けて式 2-6 ~ 式 2-8 を用いて変形すると, 次式を得る。

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \epsilon_0 \mu_0 n^2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \quad \text{式 2-9}$$

BPM 法では, z 軸方向に電場が伝搬していくとし, その成分 E_l (l は x, y, z のいずれか) を次式で定義する。

$$E_l(x, y, z) = \phi_l(x, y, z) \exp(-ik_0 n_{\text{eff}} z) \exp(i\omega t) \quad \text{式 2-10}$$

ここで, $\phi_l(x, y, z)$ は電場の複素振幅, n_{eff} は有効屈折率, k_0 は波数, ω は角振動数であり, $k_0^2 = \omega^2 \epsilon_0 \mu_0$ の関係がある。式 2-10 を式 2-9 に代入することで, 最終的に次の微分方程式を得る。

$$\frac{\partial^2 \phi_l}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi_l}{\partial y^2} - i2k_0 n_{\text{eff}} \frac{\partial \phi_l}{\partial z} + k_0^2 (n^2 - n_{\text{eff}}^2) \phi = 0 \quad \text{式 2-11}$$

BPM 法では, ある x, y 平面における $\phi_l(x, y, z = z_0)$ を初期条件として与え, 式 2-11 を用いて逐次 z 軸正方向に発展させ, 任意構造における電場分布を計算する方法である。光ファイバーの導波モードを求める場合は, z 軸方向に十分長い一様なモデルを用いて $\phi_l(x, y, z)$ の収束値 $E(x, y)$ を求

めらばよい. この $E(x,y)$ を下記に従って面積積分することで光ファイバー内のビーム径, すなわちモードフィールド径 (MFD) が求まる.

$$\text{MFD} = \frac{(\iint_{-\infty}^{\infty} |E(x,y)|^2 dx dy)^2}{(\iint_{-\infty}^{\infty} |E(x,y)|^4 dx dy)} \quad \text{式 2-12}$$

シミュレーションによりモードフィールド径 (MFD_{sim}) を求め, 実測値の MFD_{meas} と比較した.

2.2. 短尺共振器 CW レーザーの開発と発振検証方法

2.2.1 レーザー共振器

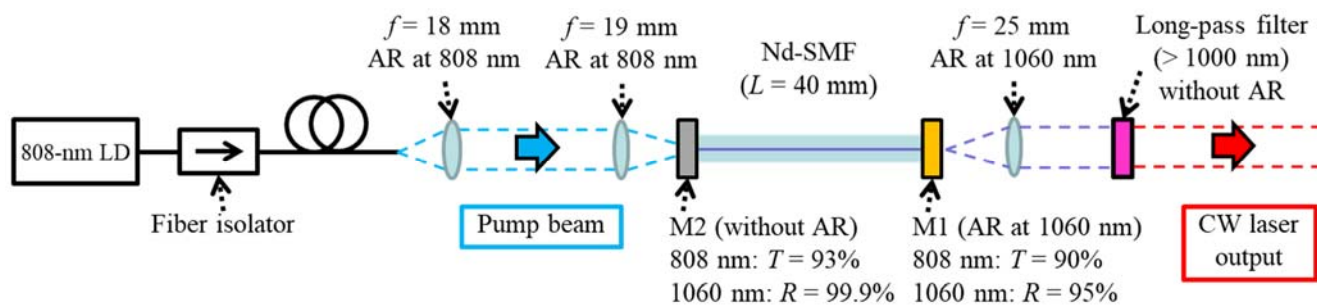


Fig. 2-10 Nd-SMF CW レーザーの光学配置.

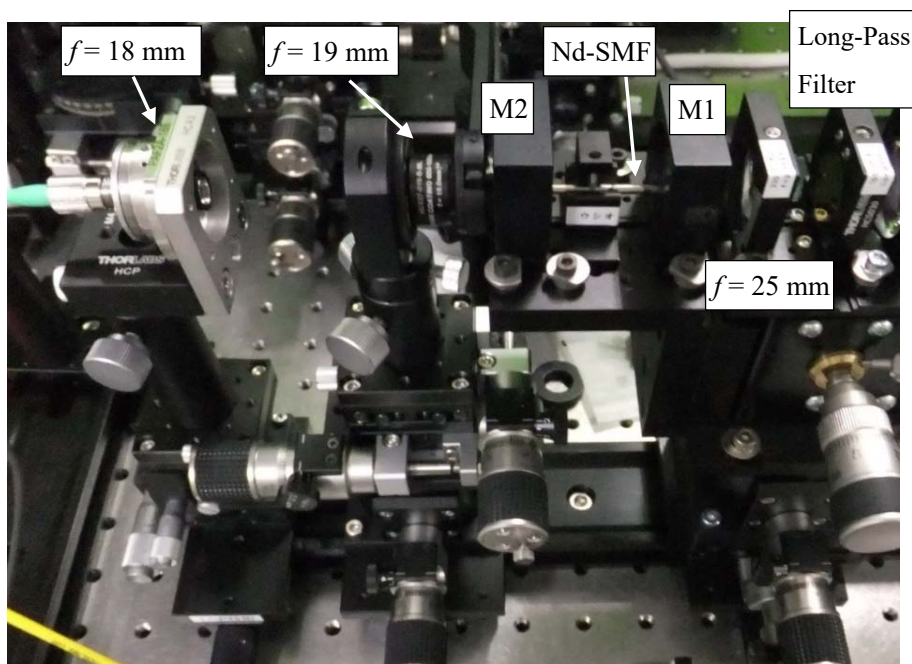


Fig. 2-11 実際に構築した Nd-SMF CW レーザーの様子.

構築した Nd-SMF CW レーザーのセットアップを Fig. 2-10 に示す。Nd-SMF は、全長 40 mm のステンレス製フェルールにエポキシ樹脂で固定した後、ファイバー研磨機を用いて両端面に PC 研磨を実施した。このフェルールに、出力ミラー (M1) と後方ミラー (M2) を密着させることによって、ファブリペロータイプのレーザー共振器を構築した。ミラーには、市販の誘電体多層膜ミラーを用い、M1 (CVI Laser Optics, PR1-1064-95) と M2 (Edmund optics, #64-337) の波長 1.060 μm における反射率は、それぞれ $R1 = 95.0\%$ と $R2 = 99.9\%$ とした。ポンプ光には、SMF 出力である波長 0.808 μm の LD (Thorlabs, FPL808S) を用いた。SMF からの出力光を、レンズを用いてコリメート光とし、M1 を介して Nd-SMF へと結合させた。CW レーザー出力は M2 から得られ、焦点距離 50 mm のレンズを用いてコリメート光にした。

2.2.2 発振特性評価方法

レーザーの出力スペクトルは、光スペクトラムアナライザ (Yokogawa, AQ6370D) を用いて計測した。残存する励起光を取り除くために、出力光をコリメートするのに用いたレンズのうしろに、ロングパスフィルター (Thorlabs, FELH1000) を置いた。

レーザーの出力強度は、受光面が Ge であるフォトダイオード (Thorlabs, S132C) とパワーメータ (Thorlabs, PM100D) を用いて計測した。Nd-SMF によって吸収されたポンプ光強度は、“Nd-SMF への入射光強度”と“Nd-SMF から出射される残存励起光強度”の差と定義した。“入射光強度”は、“M2 直前のポンプ光強度”に“M2 の透過率 93 %”をかけた値とした。同様に、“残存励起光強度”は、“M1 直後のポンプ光強度”を“M1 の透過率 90 %”で割った値とした。

Nd-SMF のレーザー出力のビーム形状は、ビームプロファイラ (Spiricon, SP620U) を用いて計測した。ビームプロファイラはビームの伝搬方向 z に、1 目盛り 0.5 μm の分解能を有するマイクロメータでスライド可能な、一軸ステージの上に載せた。Nd-SMF のレーザー出力は、焦点距離 50 mm のレンズを用いて集光させた。焦点位置近傍で z の位置を変えながら、各位置におけるビームプロファイル像を取得した。ビームの重心位置を原点とした、 x および y 方向のビームプロファイルをガウシアンでフィッティングし、各 z 位置におけるビーム径 $\varphi_{x,y}(z)$ を導出した。 x 軸方向と y 軸方向のビーム品質 ($M^2_{x,y}$) は、式 2-13 から導出できる [4] :

$$\varphi_{x,y}(z) = 2W_{x,y}(z)$$

$$W_{x,y}(z) = W_{0x,y} \cdot \sqrt{1 + \left(\frac{M^2_{x,y} \lambda (z - z_0)}{\pi \cdot W_{0x,y}^2} \right)^2} \quad \text{式 2-13}$$

ここで $W_{x,y}(z)$ はレーザー出力光の伝搬する z 軸方向の関数とした x, y 軸方向の Nd-SMF のビーム半径、 $W_{0x,y}$ は焦点位置における x, y 軸方向の Nd-SMF のビーム径、 λ はレーザー出力の波長を示す (Fig. 2-12)。

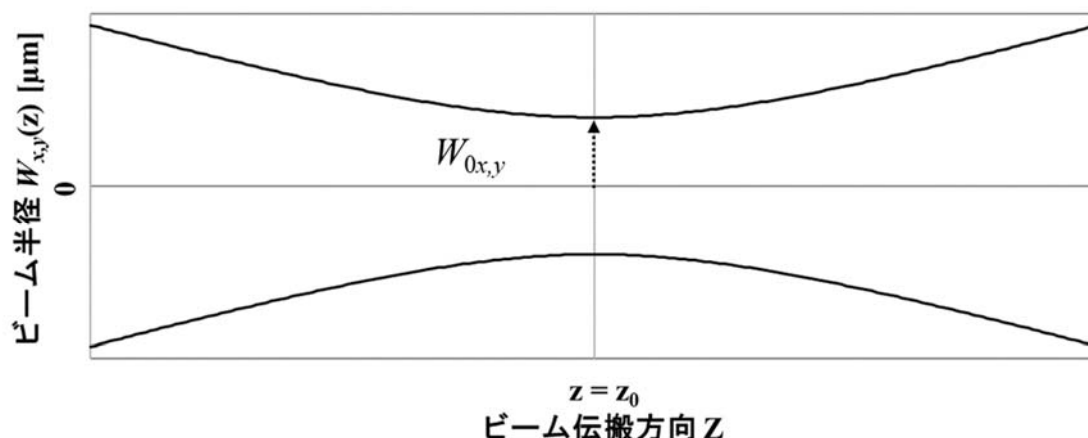


Fig. 2-12 焦点位置近傍のビーム伝搬イメージ.

2.3. 結果と考察

Fig. 2-13 に、ファイバー線引き時、線引き装置に付属のレーザー外径測定器で計測した、ファイバーの外径を示す。横軸は、ファイバーの線引きした長さを示す。ファイバー外径は 3.3 m 毎に計測した。プリフォームは、Table 2-1 で示したプリフォーム①（外径： $\phi 12.5$ mm）とプリフォーム②（外径： $\phi 20.0$ mm）である。線引き時の紡糸炉温度は、どちらも紡糸炉内のカーボンヒーター側面温度が 1600°C で一定となるようにした。この時、実際にプリフォームが挿入される内部温度は約 1750°C となっている[3].

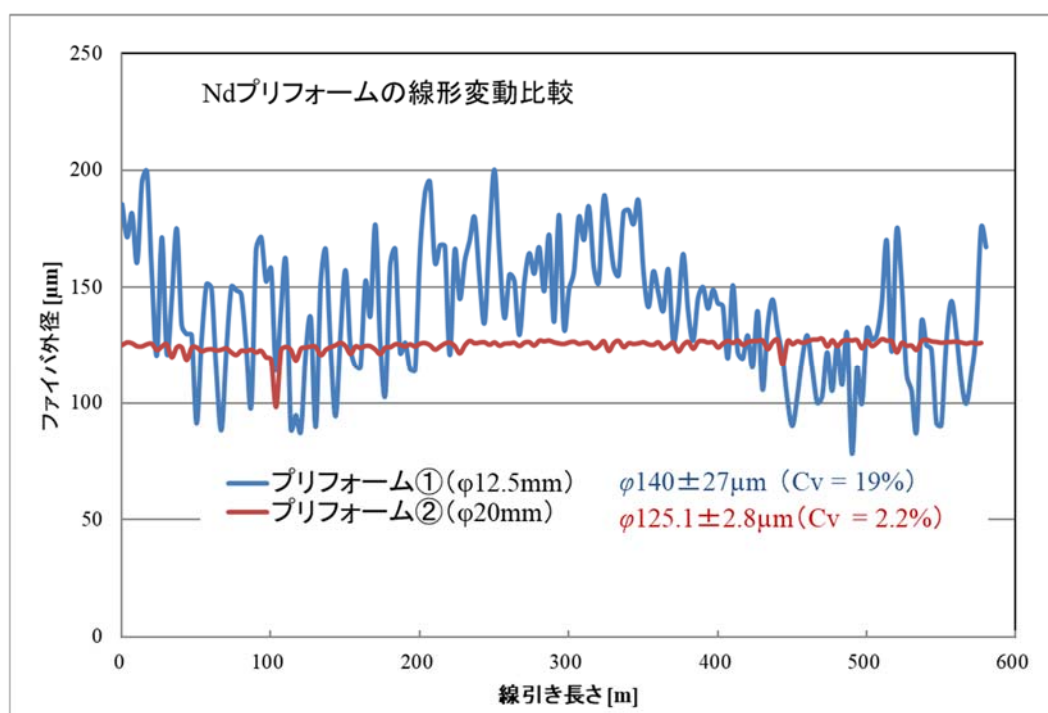


Fig. 2-13 ファイバー線引き時にレーザー外径測定器で測定した、ファイバー外径の挙動.

Table 2-2 線引き時のファイバー外径平均値と標準偏差

	線引きしたファイバーの外径		
	平均値	標準偏差	Cv 値 (標準偏差/平均値)
プリフォーム①	140.0 μm	27 μm	19 %
プリフォーム②	125.1 μm	2.8 μm	2.2 %

プリフォーム①とプリフォーム②を比較すると、プリフォーム①は線引き時の外径変動が大きかった。この原因として2つ想定できる。第1はコアとクラッドの粘度差によるものである。Nd-ZSGは、石英ガラスと比較して軟化点が下がる事が予想される。プリフォーム径が大きくなると、熱容量は大きくなることから、プリフォーム断面の温度分布はプリフォーム①と②で異なっていると想定できる。径が小さいプリフォーム①では、過剰にコア部の温度が上がったため、コアの粘度がクラッド部のそれに対して過剰に小さくなり、結果的に線引きが不安定になった可能性がある。第2に、プリフォームの体積が大きい場合、ファイバーの引き取り速度の変動に対して鈍感となり、径が安定可すると想定できる。これらの影響でプリフォーム②の方が安定した線引きを実現できたと考える。以降の実験では、ファイバー径が安定したプリフォーム②で作製したファイバーを使用することとした。

Fig. 2-14 に、線引きしたファイバーのSEM断面像の一例を示す。コアとクラッドの平均径は、 5.5 ± 0.1 及び $125 \pm 2.8 \mu\text{m}$ と計算された。3.1で先述したように、波長 $1.060 \mu\text{m}$ における本ファイバーのNAは0.116であることから、コア径 $5.5 \mu\text{m}$ を用いてVパラメータは1.89と計算される。Vパラメータが2.405より小さくなるとファイバー内をシングルモード伝搬することが期待できる。ビーム伝搬法によってNd-SMFの MFD_{sim} は $6.9 \mu\text{m}$ と計算された。Fig. 2-15 にビームプロファイラによって観測された自発放出光(蛍光)のビームプロファイル像を示す。x軸方向とy軸方向のプロファイルは、ほぼ軸対称であった。これらは、ガウシアンによってよく近似でき、x軸方向とy軸方向の MFD_{meas} はそれぞれ、7.06 及び $7.15 \mu\text{m}$ と計算された。これらの値はシミュレーションから得た MFD_{sim} とよく一致した。つぎに、Nd-SMF CWレーザーのビーム品質を計測した。Fig. 2-16 に、焦点距離 50 mmのレンズで集光させたレーザー出力光のビーム径を、レーザーの伝搬方向 z の関数として計測した結果を示す。集光されたビームの径 ϕ_{0x} と ϕ_{0y} は7.8 及び $8.0 \mu\text{m}$ と計算された。また、x軸方向とy軸方向のビーム品質 $M^2_{x,y}$ はそれぞれ、1.03 と1.01 と求めた。これらの結果から、Nd-SMFは、コアが軸対称であり、波長 $1.060 \mu\text{m}$ においてシングルモードにて動作すると結論付けた。また、式 2-4から吸収係数 $\alpha_{0.808\mu\text{m}, 1.064\mu\text{m}}$ を求めると、それぞれ、 0.644 cm^{-1} と 0.014 cm^{-1} となった。

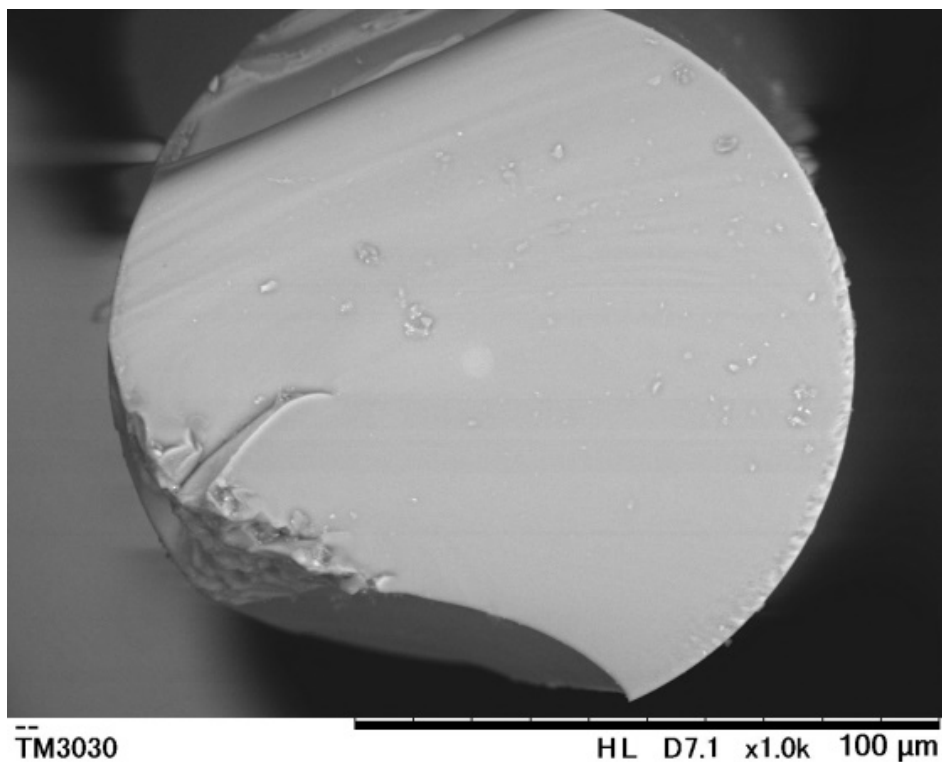


Fig. 2-14 Nd-SMF の断面 SEM 像.

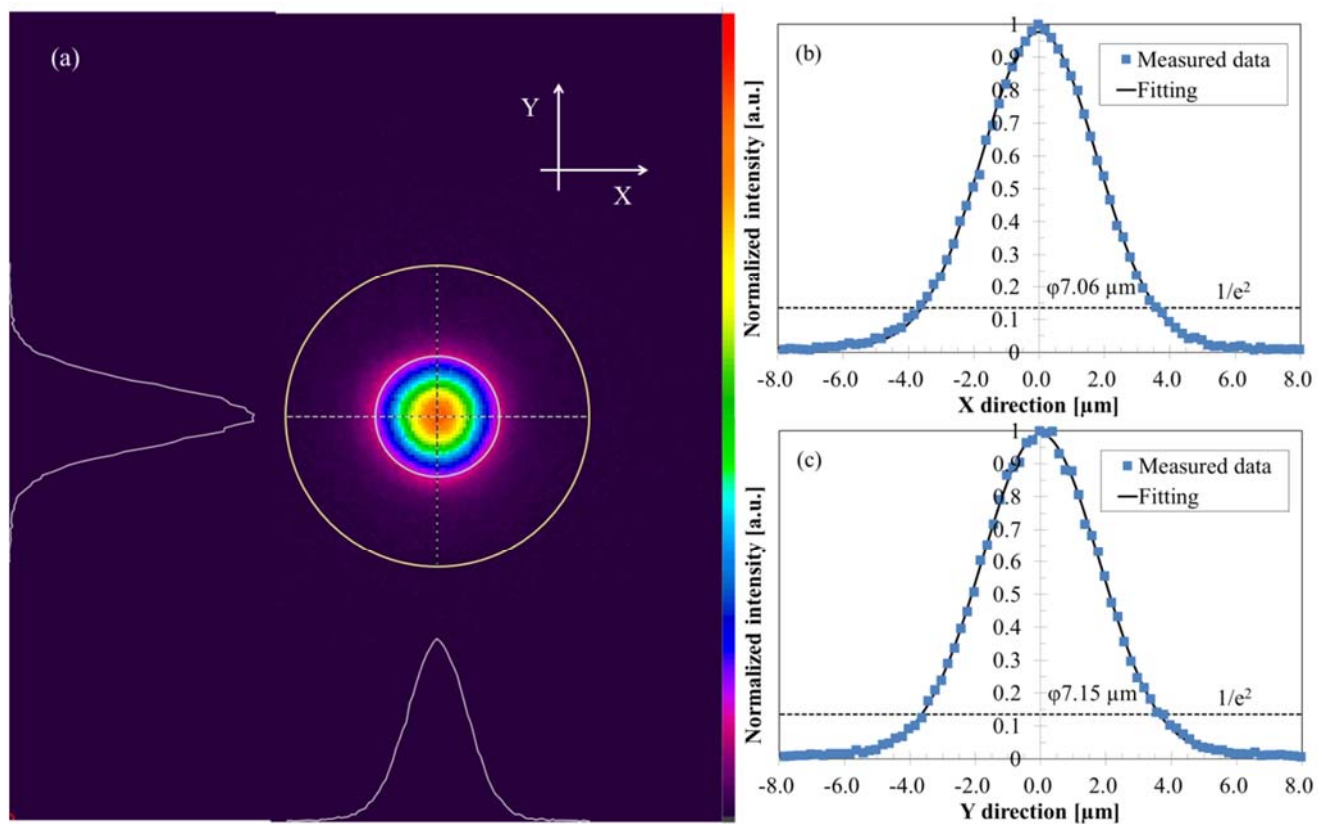


Fig. 2-15 (a) Nd-SMF の蛍光をビームプロファイラで取得した結果.

(b) ビームプロファイルのデータとガウシアンによるフィッティングの結果 (x方向) .

(b) ビームプロファイルのデータとガウシアンによるフィッティングの結果 (y方向) .

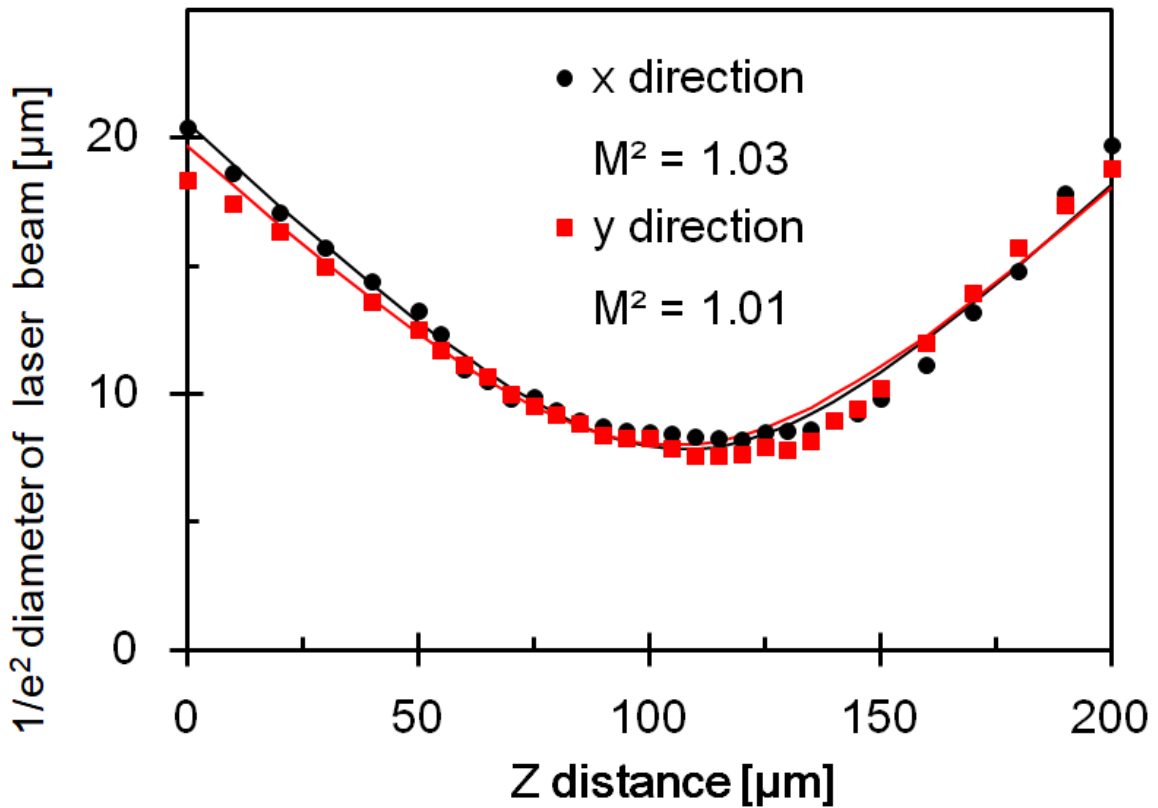
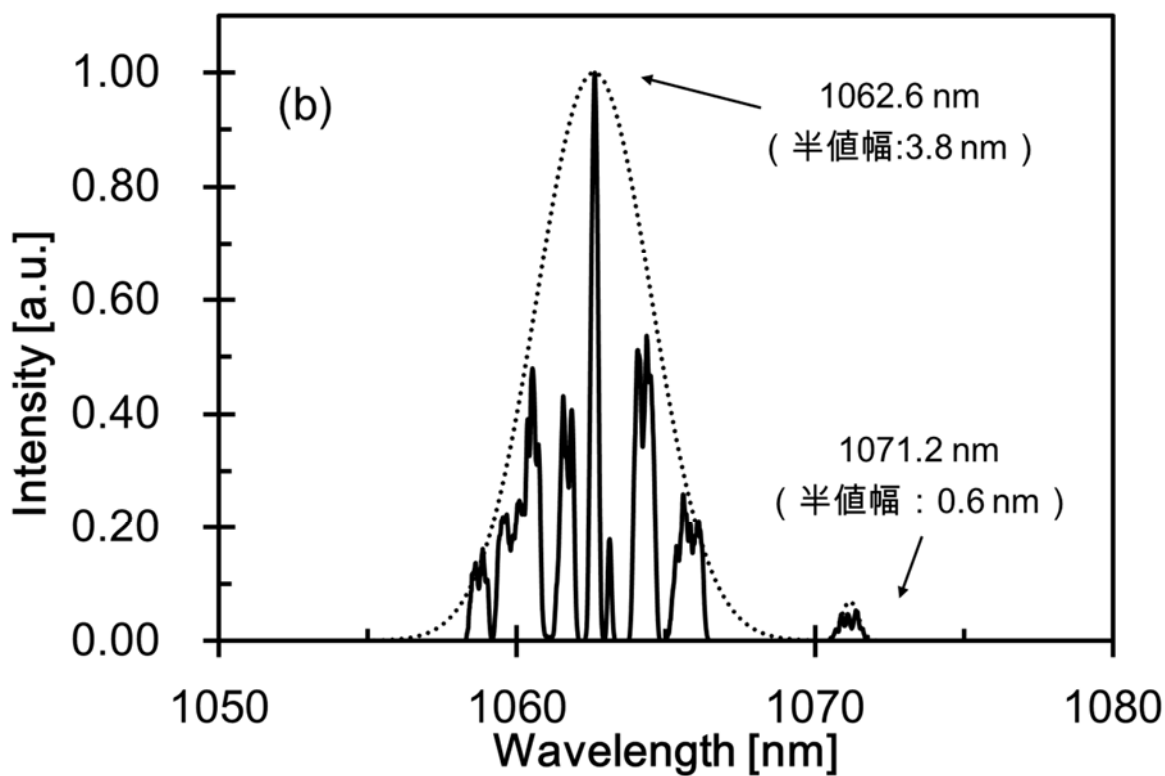
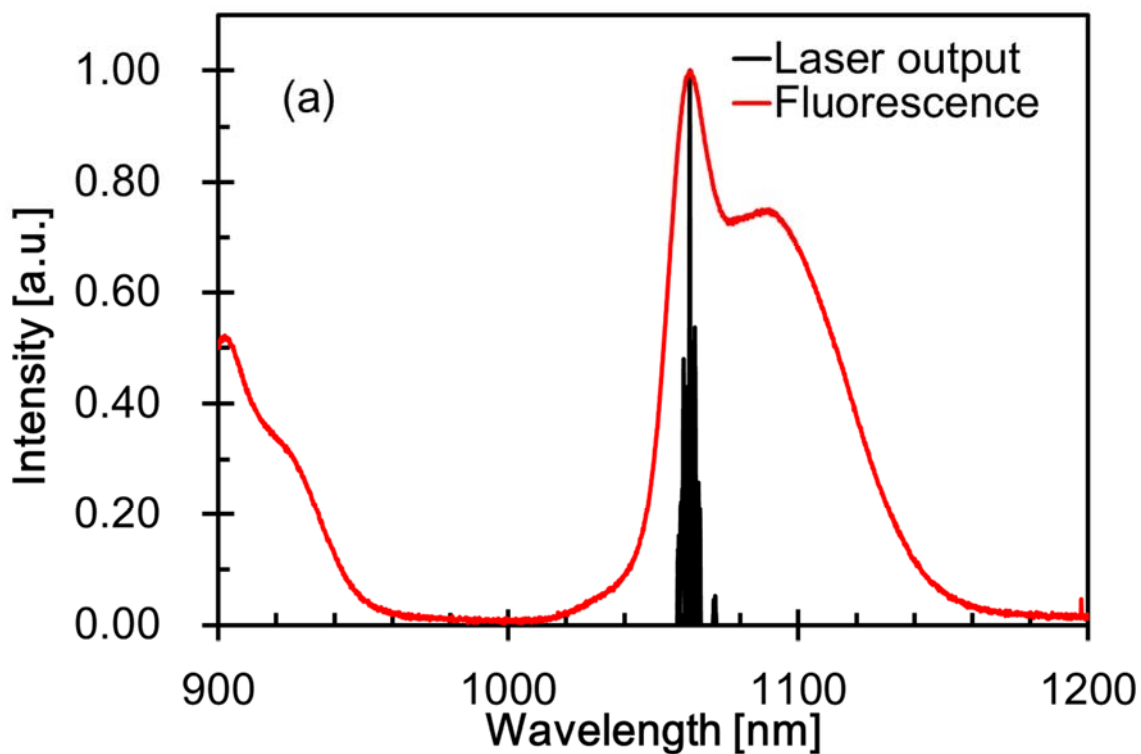


Fig. 2-16 Nd-SMF CW レーザーの出射ビームをレンズで集光し、そのビーム径を伝搬方向 z の関数としてプロットした結果. 点は実測値, 実線は式 2-13 を用いたフィッティング曲線を表す. また, ビーム品質 (M^2) の導出結果も記載した.

Fig. 2-17(a) に, Nd-SMF の蛍光及びレーザーの発振スペクトルを示す. レーザー出力スペクトルの主たるピーク波長は, 蛍光スペクトルのピークと一致した. Fig. 2-17(b) に, 波長1050~1080 nmにおけるレーザー出力スペクトルを示す. 破線は, ガウシアンでレーザー出力のピークを包絡線としてフィッティングした結果を示している. ピークバンドは二つあり, そのピーク波長と半値全幅はそれぞれ, 1062.6, 3.8 nm と 1071.2, 0.6 nmであった. 発振波長1062.6 nmとその半値全幅3.8 nm から式 1-10 を用いて期待できる最小パルス時間幅を計算すると, 437 fsと求まる. Fig. 2-17(c) に, 1062.6 nmのピークバンドを拡大したスペクトルを示す. 各ピークの波長間隔は, 0.2~2.0 nm 程度であった. このピーク構造の起源は, ①レーザー共振器の縦モード間隔 ②共振器内外のいずれかにあるファブリペロー干渉計による干渉 ③Nd³⁺の遷移エネルギー のいずれかと推測される. Table 2-3 に, ①・②を想定して式 1-4 を用いて計算した, 波長間隔 $\Delta\lambda$ の一覧をまとめた. 計算には, λ には発振波長の1062.6 nm, n にはシリカガラスの屈折率1.4499, L には共振器長及び, レーザーを構成する各光学素子の厚さを用いた. また, $\Delta\lambda$ が観測した0.20 nm や 2.0 nm となる L も逆算し, それぞれ, 1.9 mm, 0.19 mmと求まった. ①縦モード間隔は0.010 nmとなり, ピーク構造の起源とは考えにくい. 一方, ②光学素子自体がファブリペロー干渉計となっている場合, 厚さは1.9~0.19 mmとなるが, いずれの光学素子もこれらより厚く, 光学素子自体がファブリペロー干渉計を形成しているとは考えにくい. 空気が干渉計を構成している場合, 空気



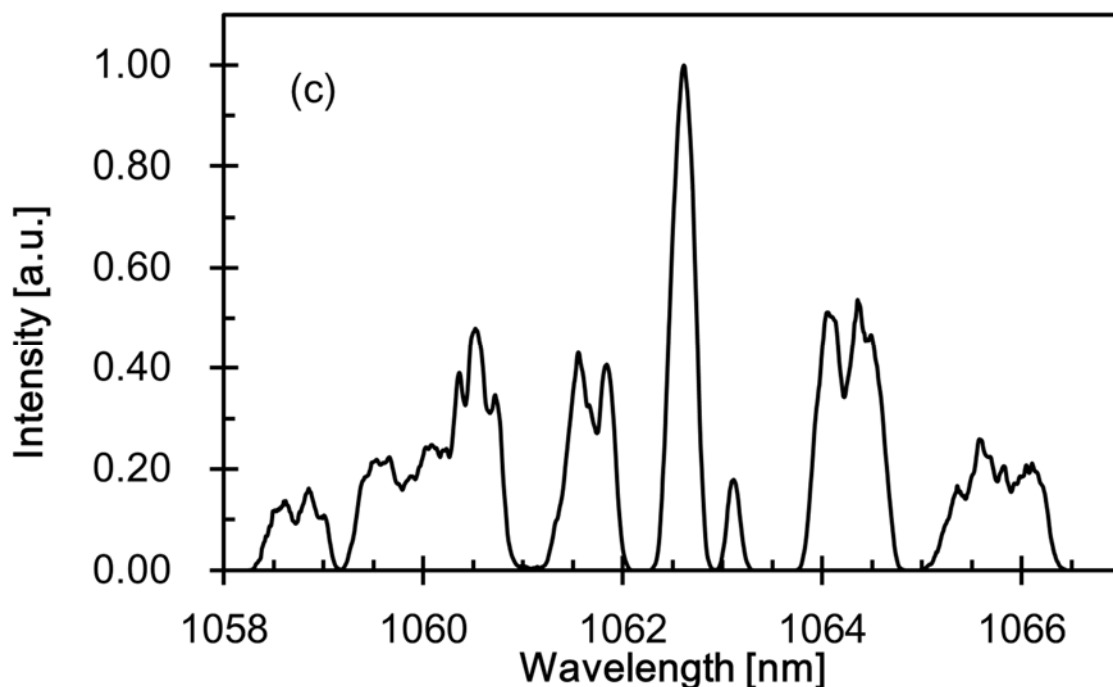


Fig. 2-17 (a) Nd-SMF の蛍光および, Nd-SMF CW レーザーの発振スペクトル. (b)・(c) Nd-SMF CW レーザーの発振スペクトル. 破線は, 包絡線をガウシアンによりフィッティングした結果を示す.

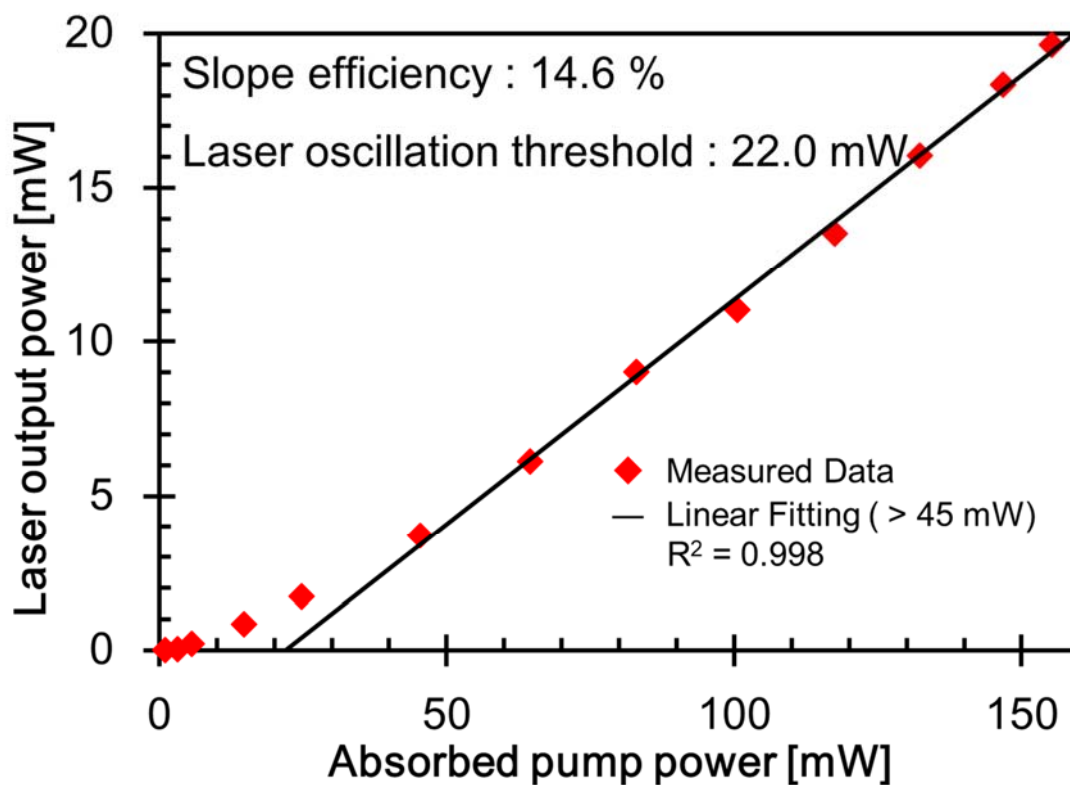


Fig. 2-18 Nd-SMF CW レーザーの入出力特性.

層の厚さはシリカガラスの屈折率を掛けた、 $2.8 \sim 0.28 \text{ mm}$ となる必要がある。レーザーには、これらに相当する光学素子間の距離はなく、②共振器内外のいずれかにあるファブリペロー干渉計による干渉がピーク構造の原因とも考えにくい。したがって、蛍光スペクトルにおいては蛍光ピークの微細構造は観測できなかったが、これらのピークは③Nd³⁺の遷移エネルギーに由来すると想定される。

Fig. 2-18 に、Nd-SMFレーザーの入出力特性を示す。レーザー発振は、ポンプ光強度が5.6 mWを超えると生じた。ポンプ光強度を増加させると、レーザー出力も増加した。やがてポンプ光強度が45 mWを超えると、レーザー出力はポンプ光強度に線形に増加する傾向となった。レーザー出力を線形で近似した場合、そのスロープ効率は14.6%，レーザー発振閾値は22.0 mWと計算された。レーザーの最大出力は、ポンプ光強度が155 mWの時、19.7 mWに達した。

以上のように、Nd-SMFを用いて共振器長が40 mmであるCWファイバーレーザーの構築に成功した。Table 2-4 に、Nd-SMFのファイバーパラメータとレーザー発振時のスロープ効率、レーザー発振閾値をまとめた。比較の為に先行研究結果もあわせて記載した。先行するシングルモードNd³⁺添加シリカファイバーレーザーでは、共振器長200 mmでスロープ効率 6%，レーザー発振閾値 4 mWを達成している[5]。今回の結果は、レーザー発振閾値は高くなる一方で、スロープ効率は大きく改善できた。また、共振器長10000 mmのレーザー[6]と比較すると、スロープ効率は42%より低い、共振器長をはるかに短くすることに成功した。

Table 2-3 共振器の縦モード、各光学素子の厚さから計算した干渉の波長間隔一覧。実際に観測される波長間隔に相当する L も逆算した。計算には、発振波長 1062.6 nm 及びシリカガラスの屈折率 1.4499 を用いた。

ピーク構造の想定される起源	場所	L	$\Delta\lambda$
①共振器の縦モード間隔	共振器	40 mm	0.010 nm
②ファブリペロー干渉計の干渉間隔	M1(出力ミラー)	6.35 mm	0.061 nm
	M2(後方ミラー)	3.00 mm	0.130 nm
	Long-pass filter	3.50 mm	0.111 nm
	(Δλから逆算)	1.9 mm	0.20 nm
		0.19 mm	2.0 nm

Table 2-4 Nd-SMF レーザー特性の比較。

Nd-SMF parameters			Laser performance			Ref
Nd ³⁺ density	Core diameter	NA	Cavity length	Threshold power	Slope efficiency	
1.07 wt. % (Nd ₂ O ₃ :1.25 wt. %)	5.5 μm	0.12	40 mm	22 mW (5.6 mW)	14.6 %	本研究
0.17 wt. %	5 μm	0.17	200 mm	4 mW	6 %	[5]
0.47 wt. %	5.0 μm	0.15	10000 mm	50 mW	42 %	[6]

もしも半導体可飽和吸収体 (SESAM) やカーボンナノチューブを可飽和吸収体として使用してパルスレーザーの構築を実現できた場合, その繰り返し周波数 f は式 1-9 に, Nd-SMFのコアの屈折率 $n=1.4545$, 共振器長 $L=40\text{ mm}$ を代入すると $f=2.58\text{ GHz}$ と求めることができる. 次に, 本実験におけるNd-SMFレーザーの内部フルーエンスがモードロック動作に適しているかを計算で求める. 内部フルーエンス Φ は式 2-14 で計算される:

$$\Phi = I \cdot \frac{R}{1-R} \cdot \frac{1}{f} \cdot \frac{1}{\pi(\text{MFD}_{\text{meas}}/2)^2} \quad \text{式 2-14}$$

ここで, I はレーザーの最高出力19.7 mW, R は M2 の反射率 95% をそれぞれ示す. この場合, 内部フルーエンス Φ は $370\text{ }\mu\text{J}/\text{cm}^2$ と計算される. この値は, SESAMが駆動するのに必要な飽和フルーエンスの典型値 $60\text{ }\mu\text{J}/\text{cm}^2$ [4] と比較して十分大きい. この見積もりは, Fig. 2-19に示したような, 超小型・シンプルでかつ超高繰り返しな, Fabry-Pérot共振器型パルスレーザーの構築が可能であることを示唆している.

Nd-SMF の波長分散 (β_2) は, 構造分散を無視すると次式から計算できる:

$$\beta_2 = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2 n_{\text{core}}}{d\lambda^2} \quad \text{式 2-15}$$

メーカーの私信及びNd-SMFの β_2 ($42\text{ ps}^2/\text{km}$)を用いると, Fig. 2-19で示した共振器のGDDは波長 $1.060\text{ }\mu\text{m}$ で 1.7 fs^2 と, 正常分散をもつと見積もることができる. 例えばA.Chong らによると, GDD が $\sim 0.10\text{ ps}^2$ の全正常分散共振器とバンド幅 10 nm のバンドパスフィルターを用いることで, 分散補償なしで超短パルスを生成することが可能であることを示している[7]. 今, Fig. 2-19で示した共振器のGDD は文献[7]と比較して小さくなっている. このため, 自発スタートする 2.58 GHz のパルス列を得るためには, 我々はMの反射バンド幅を 10 nm より狭くする必要があるかもしれない.

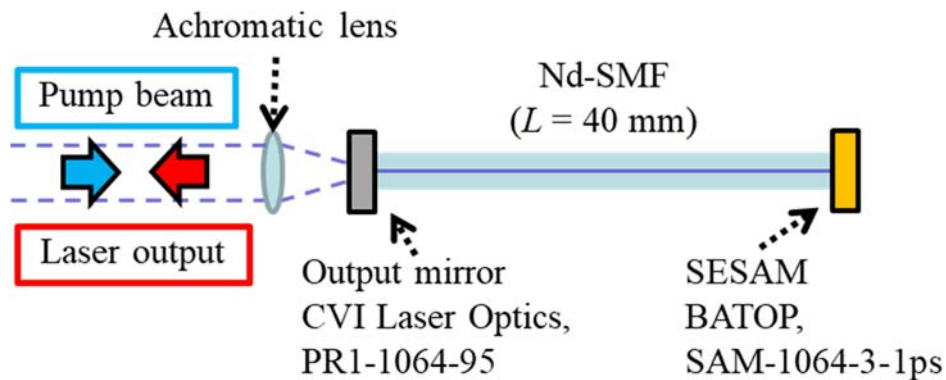


Fig. 2-19 Nd-SMF によるパルス発振の共振器案.

2.4. 参考文献

- [1] Y. Fujimoto, M. Nakatsuka, A novel method for uniform dispersion of the rare earth ions in SiO₂ glass using zeolite X, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 215 (1997) 182-191.
- [2] M. Murakami, Y. Fujimoto, S. Motokoshi, T. Sato, H. Shiraga, Short-length fiber laser oscillation in 4-mm Nd-doped silica fiber fabricated by zeolite method, *Optics Communications*, 328 (2014) 121-123.
- [3] 村上元一郎, 近畿大学大学院理工学研究科電気電子工学専攻博士前期課程論文, (2011).
- [4] W. Koechner, *Solid-state laser engineering*, Springer, 2013.
- [5] M.H. Ober, M. Hofer, U. Keller, T.H. Chiu, Self-starting, diode-pumped femtosecond Nd fiber laser, *Opt Lett*, 18 (1993) 1532.
- [6] F. Wu, D. Machewirth, E. Snitzer, G.H. Sigel, An efficient single-mode Nd³⁺ fiber laser prepared by the sol-gel method, *Journal of Materials Research*, 9 (2011) 2703-2705.
- [7] A. Chong, J. Buckley, W. Renninger, F. Wise, All-normal-dispersion femtosecond fiber laser, *Opt Express*, 14 (2006) 10095-10100.

第3章 シリカガラスファイバーを用いた GHz 高繰り返し発振レーザーの開発と発振検証

本章では、Nd-SMF を用いた GHz 高繰り返し発振レーザー (Nd-SMF パルスレーザー) を提案・構築し、発振特性について評価・議論する。

3.1. GHz 高繰り返し発振レーザーの開発と発振検証方法

3.1.1 レーザー共振器

我々が構築した Nd-SMF パルスレーザーを **Fig. 3-1** に示す。共振器を構成するレーザー媒質には、Nd-SMF CW レーザーと同様に Nd-SMF を使用し、ステンレス製のフェルールにエポキシ樹脂を用いて固定し、両端を PC 研磨した。ファブリペロー型の光共振器は、出力ミラー(M1 ; CVI Laser Optics, PR1-1064-95, 反射率 95% @ 1.060 μm) と SESAM (B atop inc., SAM-1064-3-1ps) を、Nd-SMF に直接押し当てて構成した。ミラーには、誘電多層膜を成膜した平面ガラスを用いた。SESAM には緩和時間 1ps, Modulation depth (= ΔR) 1.8%, Non-saturable loss 1.2% であり、モード同期時の反射率 $R = 98.8\%$ のものを採用した。共振器長 L は 40 mm とした。このレーザーから得られる繰り返し周波数 f は、式 1-9 より 2.58 GHz と推測する。

ポンプ光には、Nd-SMF CW レーザーと同様に、波長 0.808 μm SMF 出力の LD (Thorlabs, FPL808S) を、25°C にて定温動作させて用いた。SMF から出射したポンプ光はレンズでコリメートさせ、ダイクロイックミラーを透過させた後に、アクロマティックレンズで集光させ、M1 を介して Nd-SMF に結合させた。レーザー共振器からの出力光は、励起光を結合させた側と同じ M1 から出射される。出射光は、励起光と同じアクロマティックレンズでコリメート光とし、ダイクロイックミラーで 90° 折り返して反射させた。ロングパルフィルター (Thorlabs, FELH1000) を用いて、残存するポンプ光を取り除いた。

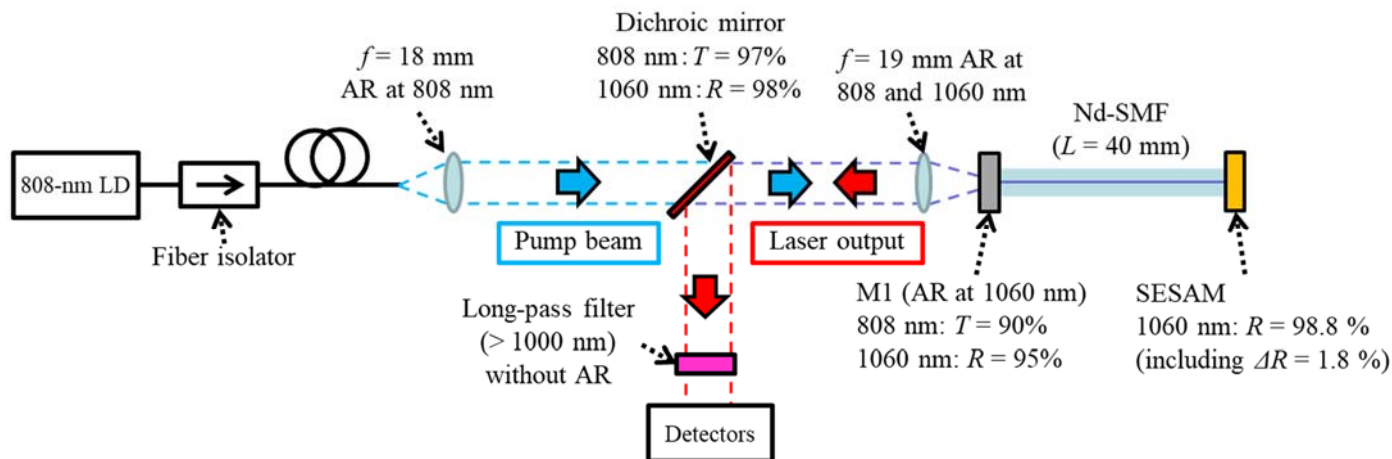


Fig. 3-1 構築したNd-SMFパルスレーザーの光学配置図。

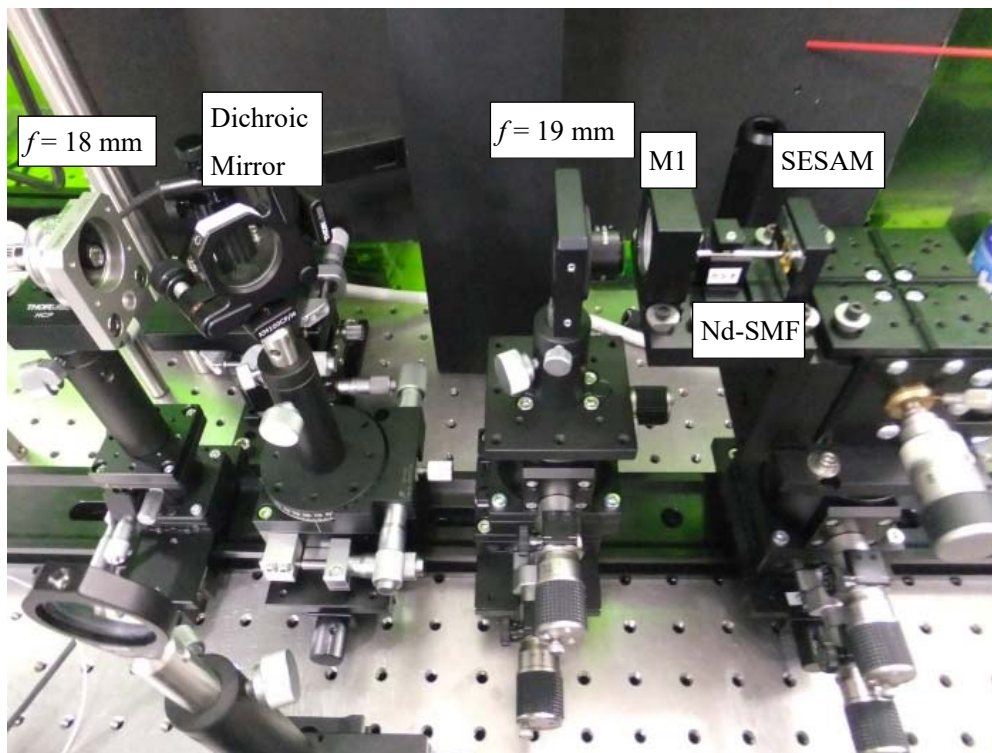


Fig. 3-2 構築した Nd-SMF パルスレーザーの外観写真.

3.1.2 発振特性評価方法

出力光のスペクトルは、光スペクトラムアナライザー（Yokogawa, AQ6370D）を用いて計測した。光強度は受光面が Ge であるフォトダイオード（Thorlabs, S132C）とパワーメータ（Thorlabs, PM100D）を用いて計測した。Nd-SMF パルスレーザーから出力されるパルス光は、帯域が 10 GHz であり受光面が InGaAs である、増幅付きフォトダイオード（Electro-Optics Technology, ET3500A）を用いて電圧信号へと変換させた。電圧信号は、RF スペクトラムアナライザー（KEYSIGHT, N9322C）を用いて周波数領域、20 GHz 帯域のオシロスコープ（テラダインレクロイ、SDA820Zi-B）を用いて時間領域で信号を取得した。

3.2. 結果と考察

発振スペクトルをFig. 3-3 に示す。発振波長とスペクトルの包絡線の半値全幅はそれぞれ、1062.7, 5.0 nm 及び 1090.8, 1.3 nmであった。これらのピークは、蛍光スペクトルにおいても強度が高い波長と対応している。M1とSESAMは波長1060 nm帯用のミラーであるが、1100 nmにおいても約90%程度の反射率を有していることから、1090.8 nmにも発振が見られた。したがって、M1の反射帯域を1062 nm帯に制限することで、発振波長は1062 nm帯のみに制限することは可能である。

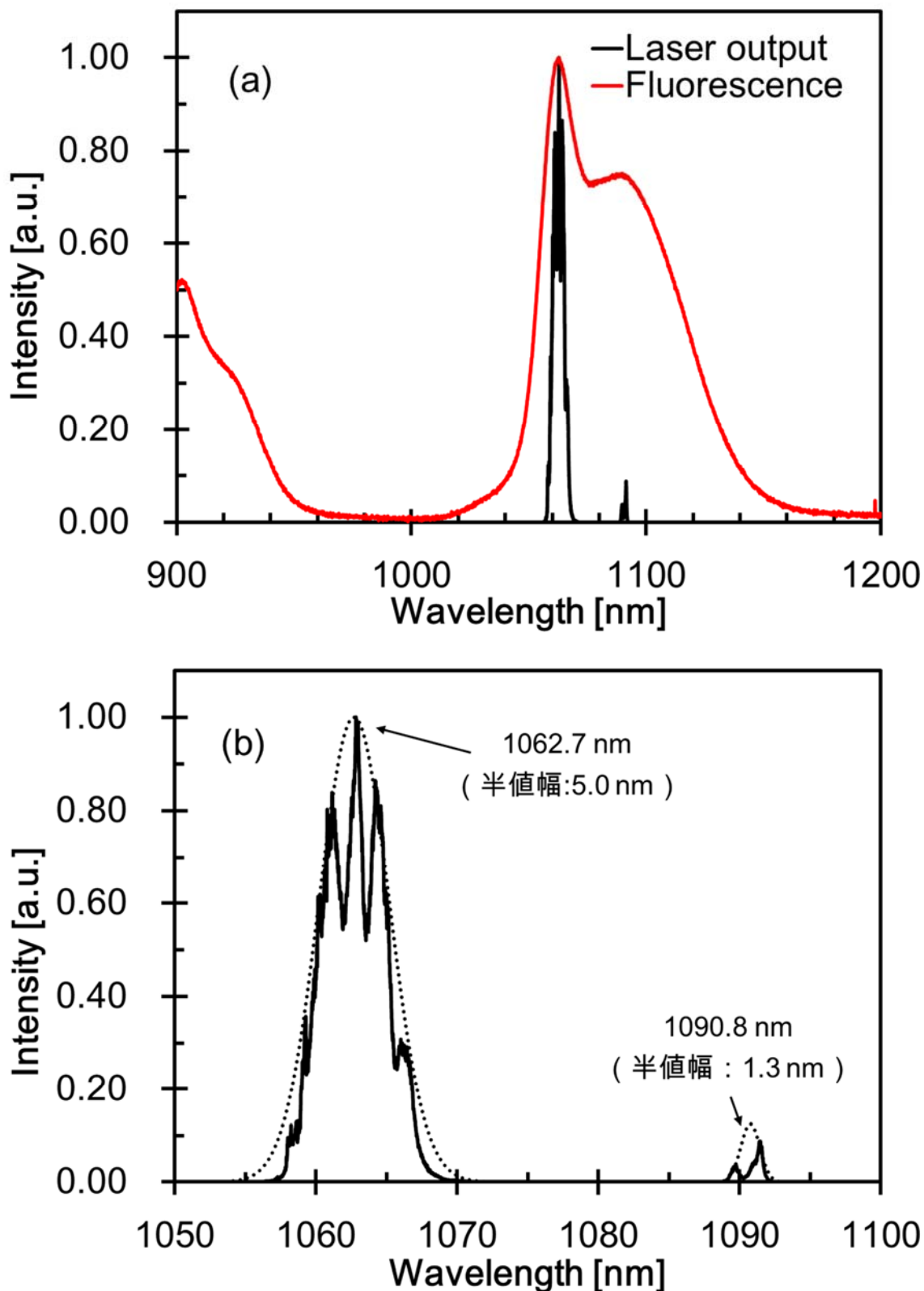


Fig. 3-3 (a) Nd-SMF パルスレーザーのレーザー出力および、Nd-SMF の蛍光スペクトル.

(b) Nd-SMF パルスレーザーのスペクトル.

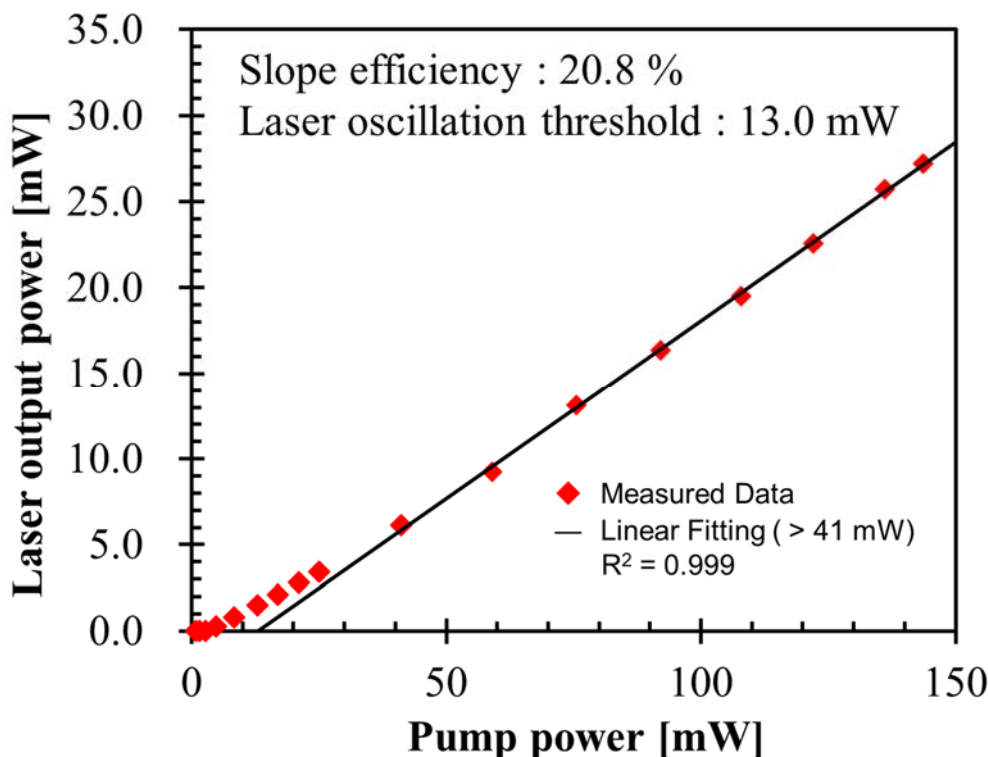


Fig. 3-4 Nd-SMF パルスレーザーの入出力特性.

次に、レーザーの入出力特性をFig. 3-4 に示す。レーザー発振は、励起光の強度(P_{pump})が約5 mW 以上になると確認できた。さらに P_{pump} を上げるとレーザーの出力(P_{out})はほぼ線形に増大し、 $P_{\text{pump}} = 144 \text{ mW}$ で P_{out} は最高値の27.2 mWに達した。直線近似を行うと、以下の関係を得た：

$$P_{\text{out}} [\text{mW}] = \eta_{\text{slope}} \cdot P_{\text{pump}} - 1.4 \quad \text{式 3-1}$$

ここで η_{slope} はスロープ効率を示し0.208 (= 20.8 %) であった。また、レーザー発振閾値(P_{th})は13.0 mWと求まった。Table 3-1にこれらの入出力特性をNd-SMF CW及びパルスレーザーについて比較し、さらにそれぞれの共振器を構成するミラーの反射率と共に一覧にした。パルスレーザーでは共振器を構成するSESAMの反射率が、CWレーザーの後方ミラー反射率より低いにも関わらず、入出力特性が改善していることが分かる。Fig. 2-10とFig. 3-2に示したように、レーザー共振器はステンレス製のフェルールに接着剤で固定したNd-SMF (Nd-SMFフェルール) をPC研磨させ、ミラーを直接押し当てて構成している。これら共振器を構成するものと全く同様なNd-SMFフェールのPC研磨面を、白色干渉計 (CANON, ZYGO NewView7300) により形状測定した結果、ステンレス面とNd-SMF端面には、約400 nmの段差が観測された。したがって、ミラーの押し当てにかかる力の差異によって、ミラーとNd-SMF端面間に差異が生じ、結果としてレーザー共振器の損失に差が生じ、スロープ効率とレーザー発振閾値が構築した共振器によって異なると推測する。ステンレス面とNd-SMF端面の段差は、ステンレスとシリカガラスの研磨度が異なるため生じたと推測できるため、シリカガラスに研磨度が近いジルコニア製のフェルールを用いると、改善が見込める。

Table 3-1 Nd-SMF CW とパルスレーザーを構成するミラーの反射率と、レーザーの入出力特性の比較.

Nd-SMFレーザー	共振器内のミラー反射率(1060 nm)		レーザーの入出力特性	
	後方ミラー(M2) もしくはSESAM	出力ミラー(M1)	レーザー発振閾値 P_{th}	スロープ効率 η_{slope}
CWレーザー	99.9 %	95 %	22.0 mW	14.6 %
パルスレーザー	98.8 % (うち $\Delta R = 1.8 %$)		13.0 mW	20.8 %

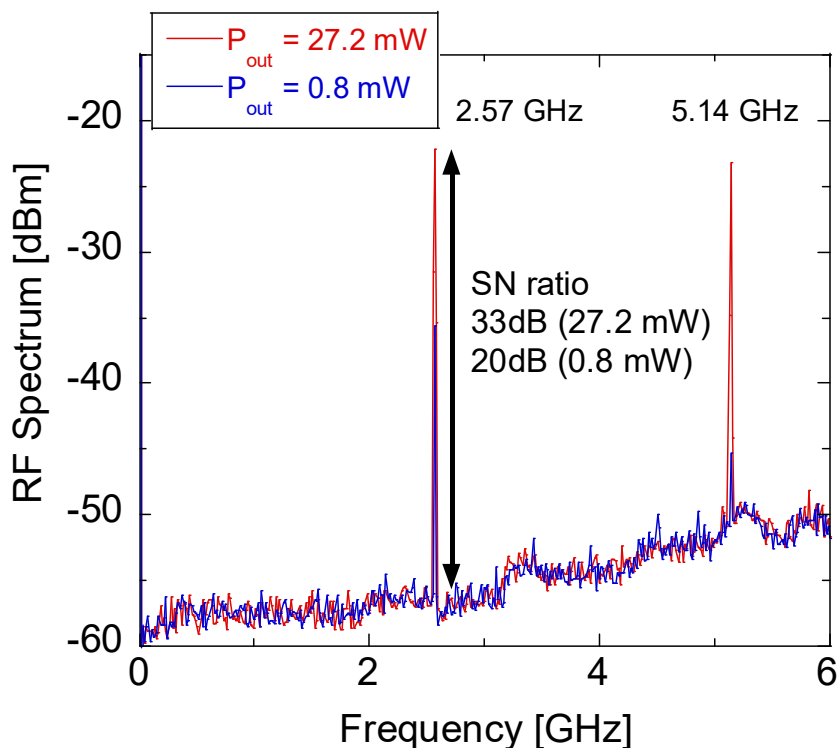


Fig. 3-5 0-7 GHz 帯域における RF スペクトル. レーザー出力は、発振閾値近辺の出力 0.8 mW ($P_{pump}:8.3 \text{ mW}$)及び最高出力の 27.2 mW ($P_{pump}:144 \text{ mW}$)とした.

レーザー発振閾値付近の0.8 mW 出力 ($P_{pump}:8.3 \text{ mW}$) と最高出力27.2 mW ($P_{pump}:144 \text{ mW}$)における、0~6 GHz 帯域のRFスペクトラムをに示す。2.57 GHz以下において、明確な信号は確認されていないことから、2.57 GHzは基本周波数モードと考えられる。また、5.14 GHzに観測されるピークは、2.57 GHzの第二次高調波と考えられる。この基本周波数モードである2.57 GHzという値は、共振器長から考えられるNd-SMFパルスレーザーの繰り返し周波数と一致しており、レーザーパルスの繰り返し周波数を検出していると考えられる。基本周波数モード (2.57 GHz) におけるSN比はそれぞれ、0.8 mW出力で20 dB、27.2 mW出力では33 dBである。Nd-SMFパルスレーザーではレーザー発振閾値近辺にて、すでに自発動作によりモードロック動作を実現しており、モードロック閾値は8.3 mWと考えられる。

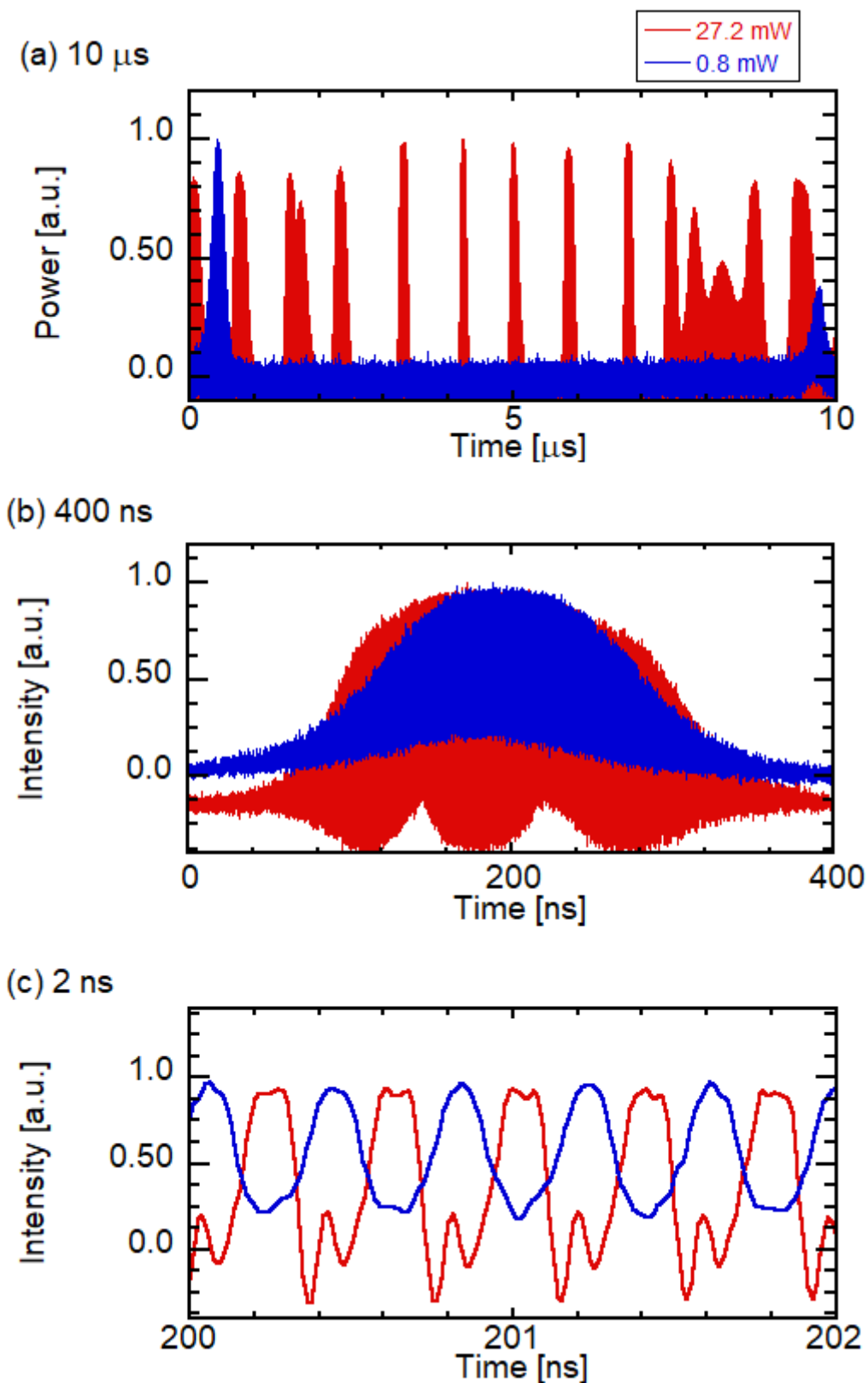


Fig. 3-6 高速オシロスコープにより取得した、フォトダイオード出力の電圧波形。それぞれのグラフで、時間軸の幅は(a)10 μ s (b) 400 ns (c) 2 ns とした。

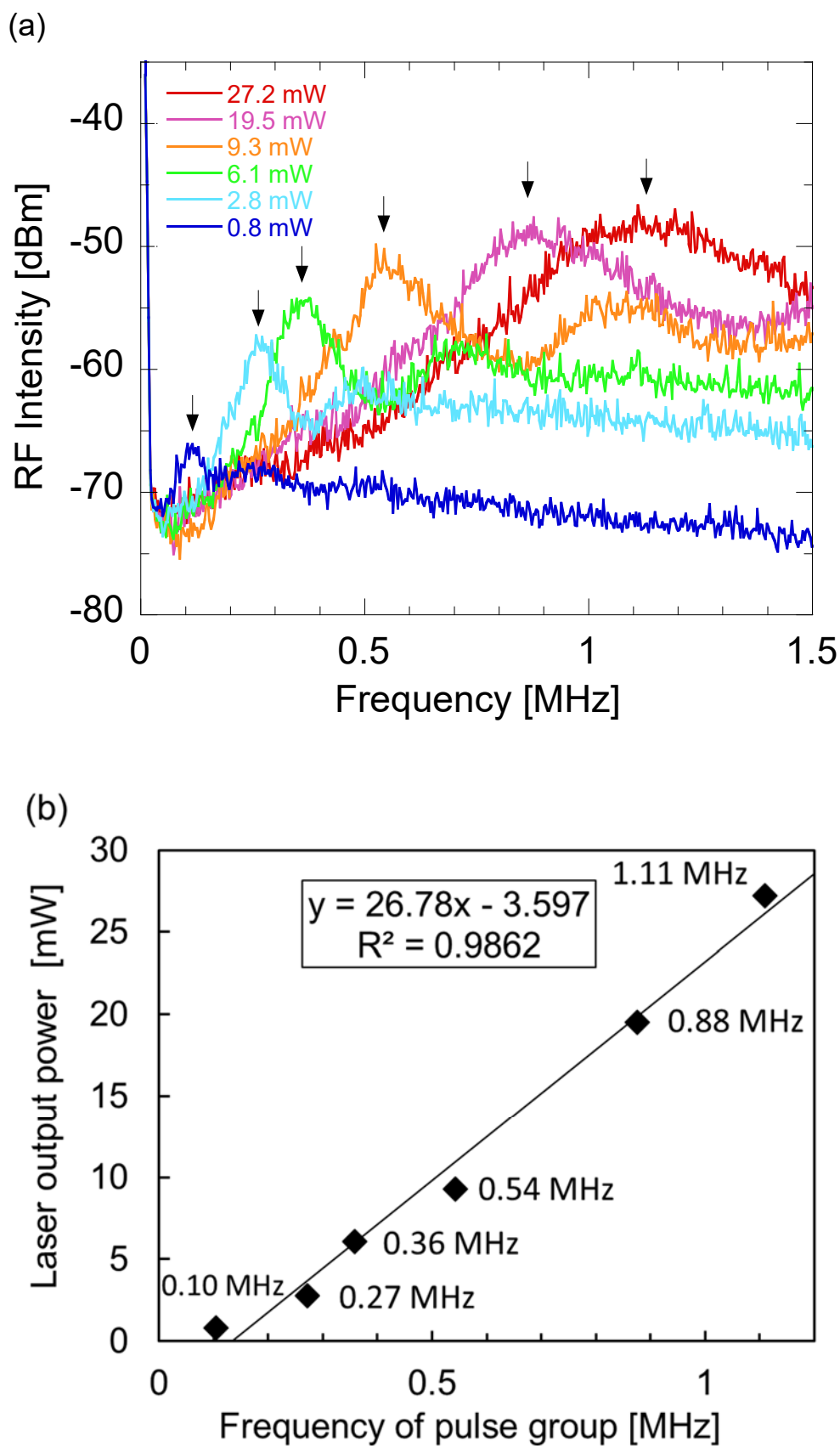


Fig. 3-7 (a) 0 ~ 1.5 MHz の低周波数域で取得した, RF スペクトル.
 (b) レーザー出力 P_{out} をパルス群周波数 f_{env} に対してプロットした結果.

次に、高速オシロスコープでとらえたパルスの時間波形を、Fig. 3-6 に示す。(a)は時間幅10 μ s、(b)は400 ns、(c)は2 nsにそれぞれ対応している。時間波形は、0.8 mW出力と27.2 mW出力で計測した。時間スケールの最も長い10 μ sレンジにて測定すると (Fig. 3-6 (a))、パルス群は0.8 mW出力では約10 μ s間隔、27.2 mW出力では0.7 μ s間隔で出力されていることがわかった。したがって、Nd-SMF Laserはいわゆる、Q-switched Mode-Lock(QML)動作[1]していることが分かった。次に、時間スケールを400 nsのレンジにして測定すると、これらのパルス群の包絡線は半値全幅約160 nsで出力されていることがわかる (Fig. 3-6 (b))。さらに時間スケールを2 ns のレンジにして計測すると、パルス群は一定間隔のパルス列である事がわかる (Fig. 3-6 (c))。このパルス列は、レーザー出力に依存せず約0.4 ns間隔で発生しており、これは2.57 GHzの繰り返し周波数とよく一致している。従って、RFスペクトラムおよび、時間波形2つの計測から共振器長の光学距離に相当する繰り返し周波数が得られている事がわかる。なお、パルス群の半値全幅160 nsとパルス列の時間間隔0.4 nsから、パルス群に含まれるパルス列は、約400個と求まる。パルスの時間幅はSESAMの緩和時間1 psと同等と推測されるが、半値幅 \sim 0.2 ns程度と長くなっている。これは、本計測に用いたPDの立ち上がり時間が 35 psと長く、パルスをとらえられていないからと推測する。

パルス群の繰り返し周波数を計測するために、0 \sim 1.5 MHzの低周波数で取得したRFスペクトルをFig. 3-7(a) に示す。0.8 mW出力と27.2 mW出力において、それぞれ0.10 MHz(10 μ s 周期)、1.1 MHz(0.91 μ s 周期) が観測されFig. 3-6(b)で観測された包絡線の繰り返しを確認できた。Fig. 3-7(b)はRFスペクトルの最初のピークを抽出し、レーザー出力との関係を示した結果である。その包絡線の繰り返し周波数 (f_{env}) は、レーザーの出力 P_{out} とともに増大する傾向が見えた。 P_{out} と f_{env} は式 3-2で示す比例関係にあり、その相関係数 R^2 は0.99であった：

$$P_{out} [\text{mW}] = 27 \times f_{env}[\text{MHz}] - 4 \quad \text{式 3-2}$$

このように、単位時間当たりに出射するパルス群の数がレーザー出力(P_{out})に対応している。式 3-2の傾きから、1パルス群あたりのエネルギーは27 mW/MHz=27 nJであることが分かる。また、 P_{out} をさらに増大させると、いずれ時間的に隣り合うパルス群の包絡線同士は重なり、パルス群を区別できなくなる。これは、CW Mode-Lock(CML)状態である。Fig. 3-6 (b) から、パルス群の半値時間幅は約160 nsであることから、CMLに移行するパルス群の間隔を160 nsとすると、 $f_{env} = 6.25$ MHzに相当する。この際のレーザー出力 P_{out} を $P_{out,CMLex}$ と表記すると、式 3-2から $P_{out,CMLex} \sim 165$ mWとなる。

一方、C. Hönninger et al.によると、可飽和吸収体を用いた固体レーザーでは、QML状態からCML状態への移行は、共振器内部の1パルスエネルギー(E_p)が、レーザー媒質とSESAMの材料パラメータから求まるcritical intracavity pulse energy ($= E_{p,c}$)を超えた際に生じる。 E_p は次式によって定義される：

$$E_p = P_{intra} T_R = P_{out} \frac{R}{(1-R)} T_R \quad \text{式 3-3}$$

ここで P_{intra} はレーザー共振器内の平均パワーを示し、 P_{out} はレーザー出力、 R は出力鏡の反射率、そして T_R は共振器内をパルス一往復するのに必要な時間をそれぞれ示す。最大出力27.2 mWと、M1の反射率95% およびパルスの繰り返し周波数2.57 GHzから、 $P_{intra} = 517$ mW、 $T_R = 1/2.57$ GHz = 0.388 ns となり、式 3-3から $E_P = 200$ pJ と求まる。一方、 $E_{P,c}$ は次式のように定義される：

$$E_{P,c} = \sqrt{\left(\frac{h\nu A_{eff,gain}}{m\sigma_{gain}}\right) \cdot (\Phi_{sat,SESAM} A_{eff,SESAM}) \cdot \Delta R} \quad \text{式 3-4}$$

ここで h はプランク定数、 ν はレーザー出力の周波数、 m はNd-SMF中を1パルスが通過する回数 (= 2回)、 $A_{eff,gain}$ はNd-SMF のモードフィールド断面積 (= $40 \mu\text{m}^2 / \phi 7.1 \mu\text{m}$)、 σ_{gain} はNd-SMFのコアであるNd-ZSGの誘導放出断面積 (= $1.3 \times 10^{-20} \text{cm}^2$) [2]、 $\Phi_{sat,SESAM}$ はSESAMの飽和吸収エネルギー (= $70 \mu\text{J}/\text{cm}^2$)、 $A_{eff,SESAM}$ はSESAMに入射する有効ビーム径 (= $A_{eff,gain}$; $40 \mu\text{m}^2 / \phi 7.1 \mu\text{m}$)、 ΔR はSESAMの反射率変化 (= modulation depth, 1.8%) をそれぞれ示す。これらの値を式 3-4 に代入すると、 $E_{P,c}$ は1.2 nJ と計算される。したがって、 $E_P (= 200 \text{ pJ}) < E_{P,c} (= 1.2 \text{ nJ})$ となり、本構成のレーザーがQML動作となることを理論的にも説明できた。CML動作の実現には、 $E_P > 1.2 \text{ nJ}$ とする必要がある。これには、本レーザーの構成をFig. 3-1から変更しない場合、レーザー出力 P_{out} を現状の最大出力27.2 mW より高くする必要がある。式 3-3 に $E_P = 1.2 \text{ nJ}$ を代入すると、 $P_{out,CML} = 162$ mW 以上でCMLに移行すると見積もり事が出来た。これは、先にパルス群の半値時間幅から見積もった、 $P_{out,CMLex} \sim 165 \text{ mW}$ とかなりよく一致した。この時の励起光強度をCML移行閾値とすると、 $P_{out} = 162 \text{ mW}$ を式 3-1に代入して、830 mWと求まった。レーザー出力 P_{out} の高出力化に加え、CMLへの移行が見込める手法をTable 3-2にまとめた。これらは、式 3-3と式 3-4から簡単に予測できる手法である。今後、QML状態からCML状態への移行を望む場合は、この表を参考にしてパラメータを変更すればよい。

Table 3-2 QML 状態から CML 状態へ移行する際の指針。

指針	パラメータ: 必要な変更	現在の値	具体的な達成手法
① E_P を高くする	P_{out} : 高出力化	27.2 mW	・励起光の高出力化 ・発振効率の改善
	R : 上昇	95.0 %	・出力鏡(M1)の変更
	T_R : 短縮	0.388 ns (2.57 GHz)	・低繰り返し周波数化
② $E_{P,c}$ を低くする	$A_{eff,gain}$, $A_{eff,SESAM}$: 縮小	$40 \mu\text{m}^2$ ($\phi 7.1 \mu\text{m}$)	・Nd-SMFコア径の縮小
	$\Phi_{sat,SESAM}$: 低下	$70 \mu\text{J}/\text{cm}^2$	・SESAMの変更
	ΔR : 低下	1.8 %	・SESAMの変更

以上のように、Nd-SMF レーザーは非常に単純な構成で 2.57 GHz の高繰り返しを実現できた。これは、シリカガラスファイバーレーザーの基本繰り返し周波数としては、最速の値である。GHz の繰り返し周波数が、パルスレーザー加工に効果的であることを最初に示した、アブレーションクーリングでは、3.46 GHz もの高繰り返し周波数であるバーストモードのパルス列を使用している。この 3.46 GHz のパルス列は、108 MHz のフェムト秒レーザーから得ている[3]。第一章で述べたように、108MHz のフェムト秒パルス列は、50:50 の割合で 2 分割される。一方のパルス列を、もう一方のパルス列に対して、半周期だけ遅延するように調整した遅延光路に入射させた後、再度もう一方のパルス列結合させることで、2 倍の繰り返し周波数である 216 MHz のパルス列を得る。このプロセスを同様に 5 回繰り返すことで、最終的に 3.46 GHz のパルス列を得ている[4]。他の手法では、高調波受動モードロック (Harmonic mode locking : HML) が良く使われる[5, 6]。HML では、数 10 MHz の繰り返し周波数のソリトンパルスをリング共振器内で循環させることで、数 GHz のパルス列を得る。例えば、42.8 MHz のパルス列から 35 次の高調波である 1.5 GHz のパルス列[5]や、23.4 MHz のパルス列から 91 次 2.13 GHz の高調波[6]を得ている。HML もまたレーザー共振器の短尺化に対する要求は緩和される長所がある。しかしながら、リング共振器内にソリトンパルスを循環させる必要があるため、リング共振器内の波長分散を複雑調整する問題があった。また、タイミングジッターは、1.5 GHz のパルス列では 6 ps 程度と[5]、悪くなる傾向があった。これに対して、SESAM を用いた短尺共振器受動モードロック動作である基本モードのパルス列では、タイミングジッターが良好である。例えば、1.59 GHz のリン酸ガラスファイバーレーザーでは、940 fs を達成できたと報告されている[7]。本レーザーにおいても、パルス群内においてタイミングジッターは良好であると考えられる。

Table 3-3 に、リン酸ガラスファイバーとシリカガラスファイバーを用いた、短尺共振器ファイバーレーザーの一覧をまとめた。短尺共振器の特性に着目すると、リン酸ガラスファイバーレーザーでは、5~30 mm の共振器長で数 GHz の高繰り返しを達成している。一方で、シリカガラスファイバーレーザーでは、CW 発振レーザーで最短 46 mm の共振器長が達成されていたが、パルス発振レーザーでは 102 mm 以上、最速 0.967 GHz しか実現できていなかった。Nd-SMF レーザーはリン酸ガラスファイバーと同様の共振器長を、シリカガラスファイバーで実現できたことがよく分かる。このように、筆者の知る限り、実際にシリカガラスファイバーレーザーの基本モードでマルチ GHz の繰り返し周波数を実現した報告例は初めてである。また、最大出力時の発振特性に着目すると、これまで光-光変換効率は 10 % 未満しか達成されていなかった。本レーザーは 18.8 %にも達し、効率の観点でも有利な結果となった。

Table 3-4 には、Table 3-3 で比較したレーザーの一部について、QML・CML 発振閾値を比較した。本レーザーにおいて、CML 状態への移行に必要な励起光強度は 830 mW と比較的高い値になった。しかしながら、Table 3-2 に示した指針を実行することで、CML 状態への移行閾値は低減が見込める。一方、Nd³⁺は四準位系で動作する活性イオンに分類されるため、三準位系の Er³⁺や疑三準位系に分類される Yb³⁺ イオン系のレーザーと比較して、QML 状態ではあるが、本レーザーの発振閾値は 8.3 mW と非常に低かった。2.57 GHz もの高繰り返し周波数を、単純でコンパクトなシリカガラスファイバーレーザーを用いて、8.3 mW 程度の低励起入力で実現できた利点は大きい。

Table 3-3 短尺共振器ファイバーレーザーの一覧。ファイバー，短尺共振器及び最大出力時の発振特性を比較した。

ファイバー特性		短尺共振器の特性		最大出力時の発振特性			Ref
材質	添加希土類イオン :濃度	共振器長	繰り返し 周波数	最大出力	励起光強度	光-光 変換効率	
リン酸 ガラス	Er ³⁺ : 1 mol % Yb ³⁺ : 2 mol %	30 mm	3.2 GHz	2.18 mW	280 mW	0.78 %	[8]
	Er ³⁺ : 1 wt. % Yb ³⁺ : 8 wt. %	5 mm	19.45 GHz	6.31 mW	600 mW	1.05 %	[9]
	Yb ³⁺ : 15.2 wt. %	20 mm	4.9 GHz	0.80 mW	90 mW	0.88 %	[10]
シリカ ガラス	Er ³⁺ : 1.32×10 ²⁰ /cm ³	46 mm	CW	15 mW	160 mW	9.3 %	[11]
	Er ³⁺ : 不明	102 mm	0.967 GHz	27.4 mW	380 mW	7.2 %	[12]
	Yb ³⁺ : 不明	200 mm	0.49 GHz	17 mW	300 mW	5.6 %	[13]
	Nd ³⁺ : 不明	>200 mm	< 50 MHz	不明	不明	不明	[14]
	Nd ³⁺ : 1.07 wt. % = 0.15 mol % = 9.8×10 ¹⁹ /cm ³ Nd ₂ O ₃ :1.25 wt. %	40 mm	2.57 GHz	27.2 mW	144 mW	18.8 %	本研究

Table 3-4 短尺共振器ファイバーレーザーの一覧。ファイバー，短尺共振器及びQML 閾値とCML 閾値を比較した。

ファイバー		短尺共振器の特性		励起光強度		Ref
材質	添加希土類イオン :濃度	共振器長	繰り返し 周波数	QML 閾値	CML 閾値	
リン酸 ガラス	Er ³⁺ : 1 wt. % Yb ³⁺ : 8 wt. %	5 mm	19.45 GHz	600 mW (QML, CML 記載なし)		[9]
	Yb ³⁺ : 15.2 wt. %	20 mm	4.9 GHz	QML 動作なし	42 mW	[10]
シリカ ガラス	Er ³⁺ : NA	102 mm	0.967 GHz	不明	200 mW	[12]
	Nd ³⁺ : NA	>200 mm	< 50 MHz	QML 動作なし	15 mW	[14]
	Nd ³⁺ : 1.07 wt. %	40 mm	2.57 GHz	8.3 mW	(推定値) 830 mW	本研究

3.3. 参考文献

- [1] C. Hönninger, R. Paschotta, F. Morier-Genoud, M. Moser, U. Keller, Q-switching stability limits of continuous-wave passive mode locking, *J. Opt. Soc. Am. B*, 16 (1999) 46-56.
- [2] Y. Fujimoto, H. Yoshida, M. Nakatsuka, T. Ueda, A. Fujinoki, Development of Nd-doped Optical Gain Material Based on Silica Glass with High Thermal Shock Parameter for High-Average-Power Laser, *Japanese Journal of Applied Physics*, 44 (2005) 1764-1770.
- [3] C. Kerse, H. Kalaycioglu, P. Elahi, B. Cetin, D.K. Kesim, O. Akcaalan, S. Yavas, M.D. Asik, B. Oktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, F.O. Ilday, Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses, *Nature*, 537 (2016) 84-88.
- [4] C. Kerse, H. Kalaycioglu, P. Elahi, Ö. Akcaalan, F.Ö. Ilday, 3.5-GHz intra-burst repetition rate ultrafast Yb-doped fiber laser, *Optics Communications*, 366 (2016) 404-409.
- [5] S. Zhou, D.G. Ouzounov, F.W. Wise, Passive harmonic mode-locking of a soliton Yb fiber laser at repetition rates to 1.5 GHz, *Opt Lett*, 31 (2006) 1041-1043.
- [6] B. Ortaç, A. Hideur, G. Martel, M. Brunel, 2-GHz passive harmonically mode-locked Yb-doped double-clad fiber laser, *Applied Physics B*, 81 (2005) 507-509.
- [7] H. Cheng, W. Wang, Y. Zhou, T. Qiao, W. Lin, Y. Guo, S. Xu, Z. Yang, High-repetition-rate ultrafast fiber lasers, *Opt Express*, 26 (2018) 16411-16421.
- [8] Y. Zhou, W. Lin, H. Cheng, W. Wang, T. Qiao, Q. Qian, S. Xu, Z. Yang, Composite filtering effect in a SESAM mode-locked fiber laser with a 3.2-GHz fundamental repetition rate: switchable states from single soliton to pulse bunch, *Opt Express*, 26 (2018) 10842-10857.
- [9] A. Martinez, S. Yamashita, Multi-gigahertz repetition rate passively modelocked fiber lasers using carbon nanotubes, *Opt Express*, 19 (2011) 6155-6163.
- [10] H. Cheng, W. Wang, Y. Zhou, T. Qiao, W. Lin, S. Xu, Z. Yang, 5 GHz fundamental repetition rate, wavelength tunable, all-fiber passively mode-locked Yb-fiber laser, *Opt Express*, 25 (2017) 27646-27651.
- [11] F. Wang, Z. Lin, C. Shao, Q. Zhou, L. Zhang, M. Wang, D. Chen, G. Gao, S. Wang, C. Yu, L. Hu, Centimeter-scale Yb-free heavily Er-doped silica fiber laser, *Opt Lett*, 43 (2018) 2356-2359.
- [12] H. Byun, M.Y. Sander, A. Motamedi, H. Shen, G.S. Petrich, L.A. Kolodziejewski, E.P. Ippen, F.X. Kartner, Compact, stable 1 GHz femtosecond Er-doped fiber lasers, *Appl Opt*, 49 (2010) 5577-5582.
- [13] J. Liu, J. Xu, P. Wang, High Repetition-Rate Narrow Bandwidth SESAM Mode-Locked Yb-Doped Fiber Lasers, *IEEE Photonics Technology Letters*, 24 (2012) 539-541.
- [14] M.H. Ober, M. Hofer, U. Keller, T.H. Chiu, Self-starting, diode-pumped femtosecond Nd fiber laser, *Opt Lett*, 18 (1993) 1532.

第4章 他波長への展開に向けた希土類高濃度添加シリカガラスの光学特性評価

本章では、Er 高濃度添加石英ガラス (Er^{3+} heavily doped Zeolite Silica Glass : ErZSG) の作製方法とその光学特性評価方法について示し、ErZSG の光学特性を評価・議論する。

4.1. 実験

4.1.1 Er Zeolite のイオン交換

ErZSG の作製では、最初に Zeolite X のイオン交換を行う。Fig. 4-1 に作業手順のフロー図を示す。

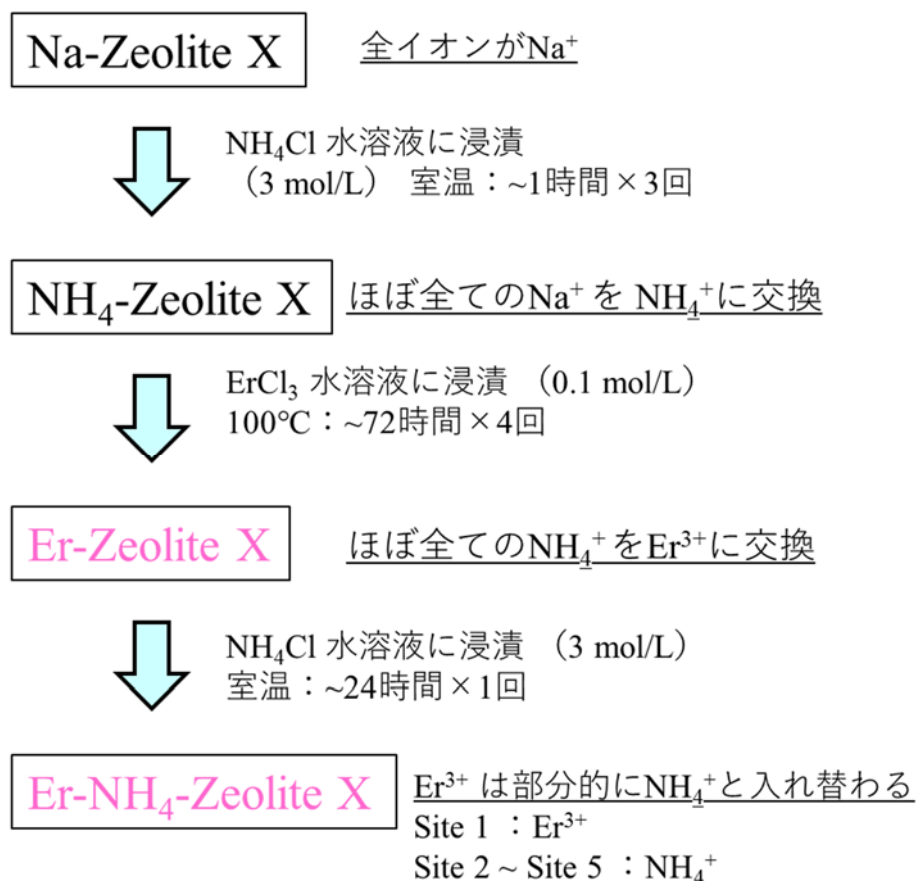


Fig. 4-1 ゼオライト X へ Er を導入するための手段を示したフロー図。

SiO_2 (純度：99.9%)、 Al_2O_3 (99.9%)、 MgCO_3 (99.9%)、Na ZeoliteX ($\text{Na}_{86}\text{Al}_{86}\text{Si}_{106}\text{O}_{384} \cdot 264\text{H}_2\text{O}$, 純度：不明, 東ソー製)、 $\text{ErCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (99.9%)、 NH_4Cl (99.5%) の粉末を、ErZSG の出発物質と

して用いた. 最初に, Na-ZeoliteX に含まれる Na^+ イオンは, NH_4^+ と置換させた. Na-ZeoliteX は NH_4Cl 水溶液 (3 mol/L) に室温で約 3 時間浸漬して攪拌し, 全ての Na^+ イオンを NH_4^+ イオンに交換し $\text{NH}_4\text{-ZeoliteX}$ とした. 次に, $\text{NH}_4\text{-ZeoliteX}$ は 100°C にした $\text{ErCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 水溶液 (0.1 mol/L) に 2 週間浸漬して攪拌させた. こうして, 全ての陽イオンを Er^{3+} イオンに交換した Er-Zeolite X を得た. 次に, この Er-Zeolite X は過剰な Er^{3+} イオンを取り除くために, 室温の NH_4Cl 水溶液 (3 mol/L) に 24 時間浸漬させた. こうして最終的に, 隣接する Er^{3+} イオン同士が 0.88 nm 離れた[1] 添加前駆体として, Er- $\text{NH}_4\text{-Zeolite X}$ を得た.

4.1.2 Er^{3+} 高濃度添加シリカガラス (ErZSG) の作製

Fig. 4-2 に, Er- $\text{NH}_4\text{-Zeolite X}$ と SiO_2 粉末から ErZSG を作製している様子を示す.

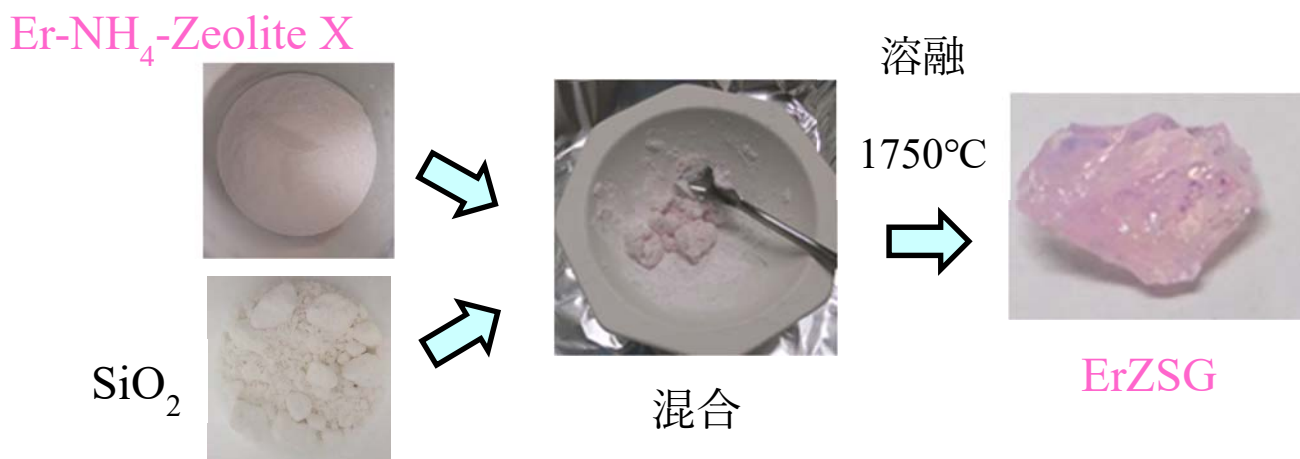


Fig. 4-2 ErZSG 作製の様子.

Er- $\text{NH}_4\text{-ZeoliteX}$ は, SiO_2 , Al_2O_3 , および MgCO_3 粉末と少量の水を加えて乳鉢で混合させた. 次に, 大気中にて 800°C で4 時間及び, 1200°C で4 時間仮焼結させ, 不純物である有機物を除去した. 次に, この混合体はアルミナのルツボ中に詰めて 1750°C で8 時間熔融させ, ErZSGを得た. Er ZeoliteXの混合割合を変えることで, Er^{3+} の添加濃度が異なる4 種類のErZSGを作製した.

4.1.3 材料組成と物性評価方法

作製したErZSG試料のモル組成は, 蛍光X線分析装置 (EDAX, ORBIS) を用いて計測した. これら4種類のErZSG試料の組成をTable 4-1に示す.

ErZSG 3バルク試料の濃度変動は, 走査電子顕微鏡 (Hitachi, TM3030) 付属の電子線プローブマイクロアナライザ (= EPMA) システム (Oxford, Swift ED 3000) の空間マッピングおよびライン分析を用いて分析した.

Table 4-1 ErZSG の組成

Element	Mass concentration [wt. %]					Number density [$\times 10^{20}/\text{cm}^3$]
	Er	Al	Mg	Si	O	Er
ErZSG 1	0.96 %	6.3 %	3.2 %	38.2 %	51.4 %	0.76
ErZSG 2	1.2 %	4.6 %	3.3 %	39.4 %	51.4 %	0.96
ErZSG 3	2.0 %	5.0 %	2.2 %	39.6 %	51.3 %	1.6
ErZSG 4	3.3 %	9.8 %	3.0 %	34.0 %	49.9 %	2.6

4.1.4 分光特性評価方法

ErZSG 3のシリカとの屈折率差 Δn は、プリフォームアナライザ (Advanced Technology, IPA-MC1) を用いて計測した。光ファイバーのプリフォーム試料は、本計測のために作製され、コア ($r=0.26$ mm) にはErZSG 3, クラッドには純シリカを用いた。

ErZSG 3は、厚さ 1.0 mm に研磨した。赤外域の透過スペクトルは、波長 2.5 μm ~ 20 μm (波数 4000 cm^{-1} ~ 500 cm^{-1}) の範囲で、FTIR (Bruker, VERTEX70V) を用いて計測した。波長 400 ~ 2000 nm の透過スペクトルは、可視紫外分光光度計 (日本分光, V-2000) を用いて計測した。全ての ErZSG 試料の、蛍光スペクトル、蛍光励起スペクトルおよび蛍光寿命は、蛍光分光光度計 (日本分光, SS25) を用いて計測した。波長 900 ~ 1600 nm の蛍光スペクトルは、励起波長を 520 nm として計測された。蛍光励起スペクトルは、 $^4I_{13/2}$ から $^4I_{15/2}$ 遷移に相当する 1530 nm の蛍光強度を、励起波長を 400 ~ 1100 nm の範囲で変化させることによって計測された。波長 1530 nm の蛍光寿命は、受光面が InGaAs である光ダイオードとデジタルオシロスコープ (Tektronix 2430A) によって計測された。励起光は、発光時間幅 1.0 μs の Xe フラッシュランプを分光した 520 nm 光とした。これらの全ての計測は、室温にて実施した。

Table 4-2 ErZSG の濃度と、実際に評価した光学計測の一覧。

Er ³⁺ conc. XRF (EDAX, ORBIS)	UV-VIS スペクトル (JASCO, V-7200)	蛍光スペクトル (JASCO, SS25)		
		蛍光	蛍光励起	蛍光寿命
0.96 wt. %	-	-	-	○
1.2 wt. %	-	-	-	○
2.0 wt. %	○	○	○	○
3.3 wt. %	-	-	-	○

4.2. 結果と考察

EPMAで計測したErZSG 3バルクガラス中に含まれる, Al, Mg およびEr 各元素の空間分布分析結果をFig. 4-3 に示す. これらの元素の位置を示す輝点はErZSG 3バルクガラス中に均一に分散しており明らかな凝集は確認できなかった. 同様に, 線分析の結果をFig. 4-4 に示す. この結果もまた, 各元素の良好な均一分散を示している.

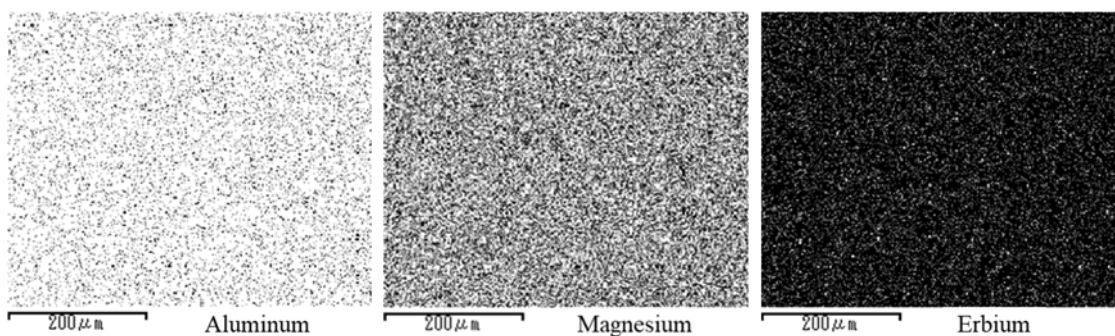


Fig. 4-3 ErZSG 3 バルク試料の EPMA マッピング像.
(左 :アルミニウム, 中央 : マグネシウム, 右 :エルビウム)

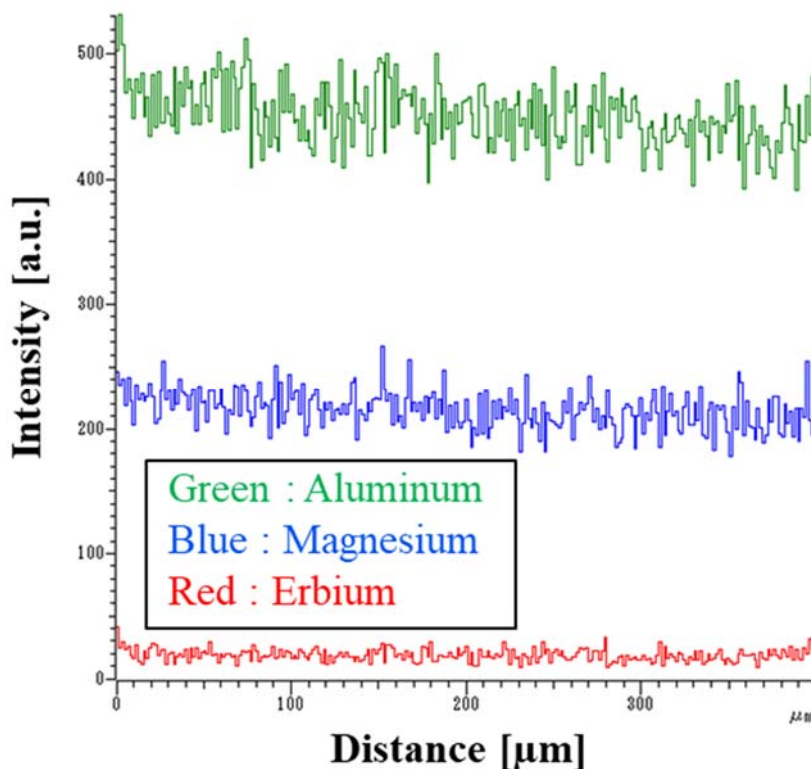


Fig. 4-4 ErZSG 3 の EPMA 線分析の結果.

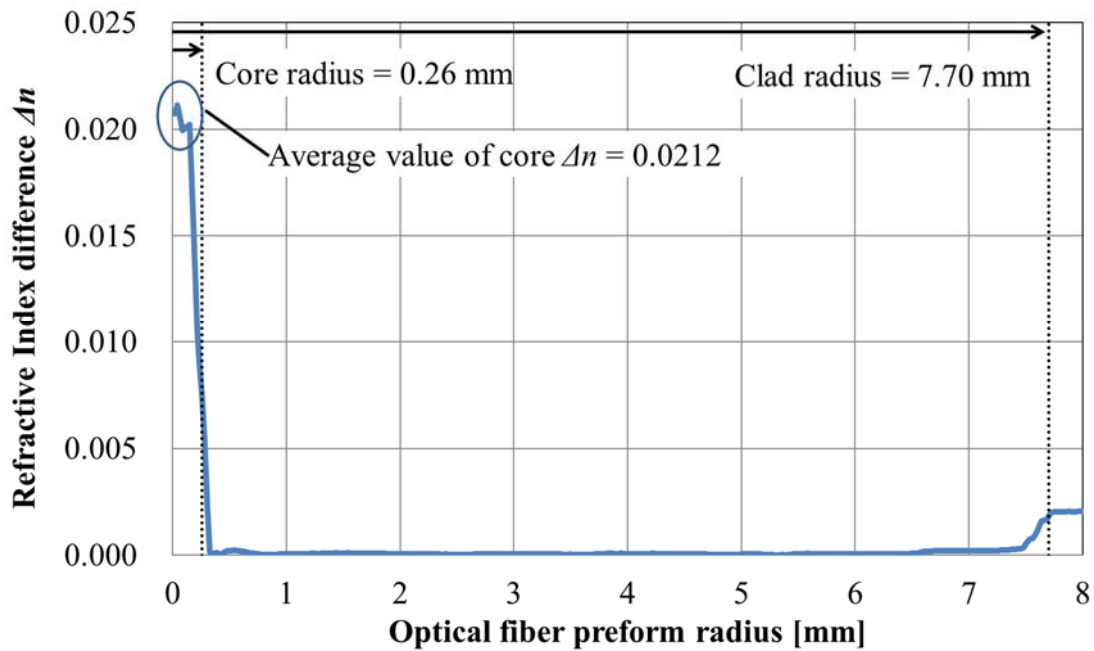


Fig. 4-5 プリフォームの半径に対して取得した，ErZSG 3 (Er³⁺; 2.0 wt.%) コアと純シリカクラッド間の屈折率差 Δn .

プリフォームアナライザーで計測した，シリカと ErZSG 3 の屈折率差 Δn の半径方向位置プロファイルを示す。Fig. 4-5 に示す。コア領域における Δn の平均値は 0.0212 と計算された。それゆえ ErZSG 3 の屈折率 $n_{\text{ErZSG 3}}$ は，純シリカの屈折率 n_{Silica} [2] に 0.0212 を足した値となる。波長 1530 nm における n_{Silica} は 1.4443[2] であるので，波長 1530 nm における $n_{\text{ErZSG 3}}$ は 1.4655 と計算された。これらの屈折率を式 4-1 に代入し，プリフォームの NA を求めると，0.248 と計算された。

$$NA = \sqrt{(n_{\text{ErZSG 3}})^2 - (n_{\text{Silica}})^2} \quad \text{式 4-1}$$

もしもこのプリフォームを，光ファイバー線引き装置を用いてクラッド径 125 μm の光ファイバーに線引きした場合，得られる光ファイバーのコア径(ϕ_{core}) は 4.2 μm となる。この光ファイバーは波長 1530 nm でシングルモードファイバーとなるはずである。なぜなら，式 4-2 を用いると光ファイバーの V ナンバーは 2.143 と計算され，2.405 よりも小さくなるからである。

$$V \text{ number} = \frac{\pi \phi_{\text{core}} NA}{\lambda (= 1530\text{nm})} \quad \text{式 4-2}$$

FTIR で計測した，遠赤外線域における ErZSG3 (Er³⁺ 2.0 wt. %) の透過スペクトルを，Fig. 4-6 に示す。波数 2260 cm^{-1} の吸収ピークは Si-O-Si の倍音伸縮振動，3670 cm^{-1} の吸収ピークは OH 基の基本振動にそれぞれ帰属できる[3]。試料に含まれる OH 基の濃度 C_{OH} は，式 4-3 から求まる[3]。

$$C_{OH} [\text{wtppm}] = \frac{M_{OH}}{\rho t \epsilon} \cdot \log_{10} \frac{T_0}{T} \quad \text{式 4-3}$$

ここで、 M_{OH} は OH 基のモル質量、 ρ はシリカガラスの密度 2.196 g/cm^3 [4]、 t は試料の厚さ mm、 ϵ は OH 基のモル吸光係数 $7.0 \text{ L/mol} \cdot \text{mm}$ 、 T_0 と T はそれぞれ 3670 cm^{-1} のベースラインとなる透過率と試料の透過率を、それぞれ示している。式 4-3 から ErZSG3 の C_{OH} は、 74.3 wt. ppm と計算された。

可視紫外分光光度計で計測した、ErZSG3 (Er^{3+} 2.0 wt. %) の吸収スペクトルを、Fig. 4-7 に示す。吸収スペクトルは 8 個のピークを持ち、それらは全て Er^{3+} の基底状態 ($^4I_{15/2}$) から励起準位への遷移に相当する波長に帰属させることができる。それぞれのピークについて、対応する励起準位を記載した。吸収ピークのうち、最大強度を示すピークの波長は 520 nm であり、これは $^4I_{15/2}$ から $^4S_{3/2}$ 、 $^4I_{15/2}$ から $^2H_{11/2}$ への 2 つの遷移が重なったピークである。OH 基の倍音振動は、波長 $1.36 \mu\text{m}$ (波数 7340 cm^{-1}) に相当するが、Fig. 4-7 のスペクトルには、明瞭な吸収ピークを確認できなかった。

$^4I_{13/2}$ から $^4I_{15/2}$ への遷移に相当する、波長 1530 nm における蛍光強度を、励起波長を変えて計測した蛍光励起スペクトルを、Fig. 4-8 に示す。蛍光励起スペクトルは、最大強度を示す励起波長 520 nm で規格化した。蛍光励起スペクトルのピーク位置は、Fig. 4-7 で示した吸収スペクトルとほぼ同じ波長であった。 Er^{3+} の添加濃度が増加するに伴って、波長 520 nm 以外のピークは全て減衰する傾向が見えた。しかしながら、これらの 4 つのスペクトルはほとんど同じ形状であり、これは、 Er^{3+} 周囲の結晶場が大きく変化していないことを示唆している。

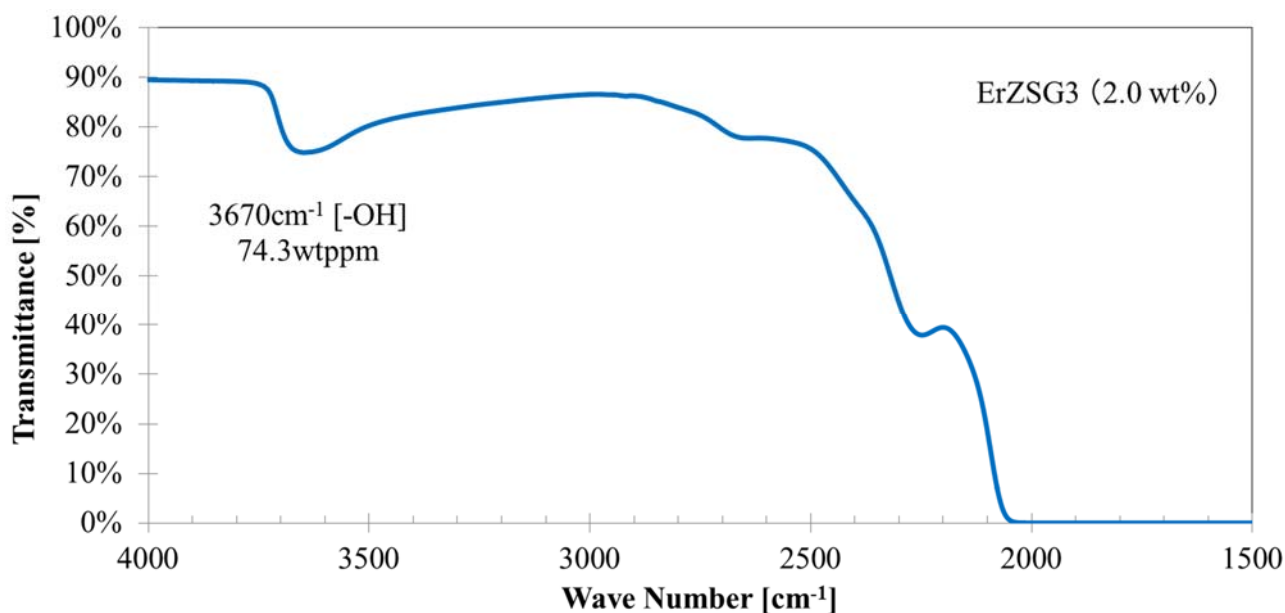


Fig. 4-6 FTIR により取得した、ErZSG3 の透過スペクトル。

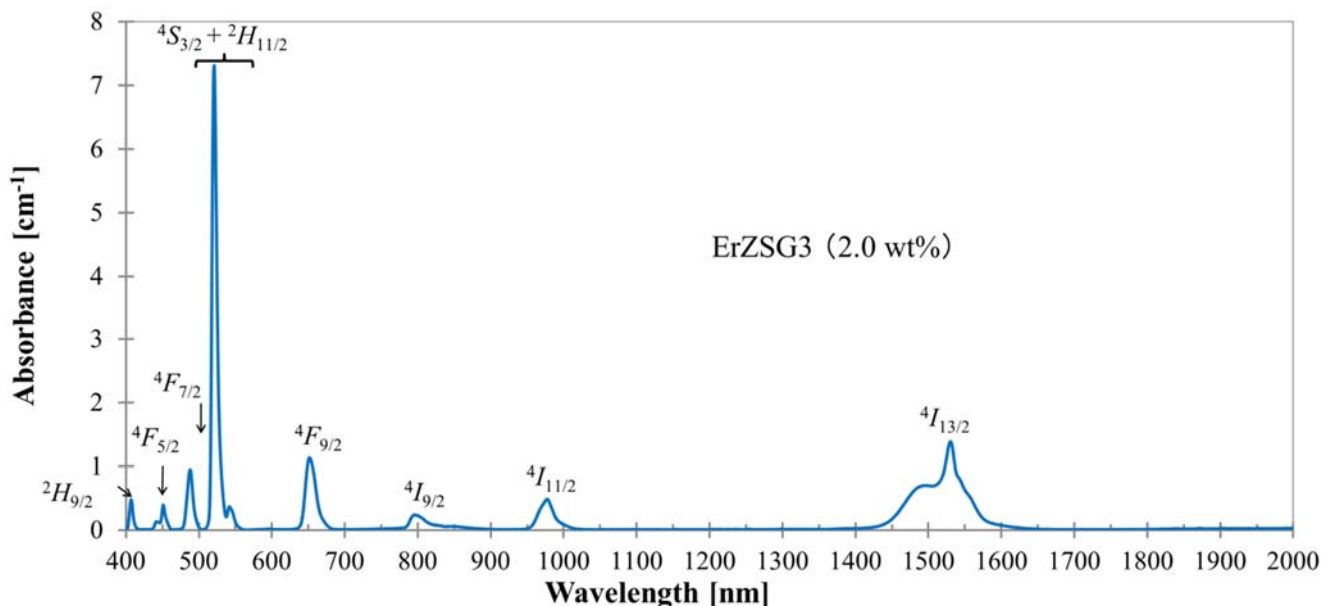


Fig. 4-7 UV-VIS により取得した, ErZSG3 の透過スペクトル.

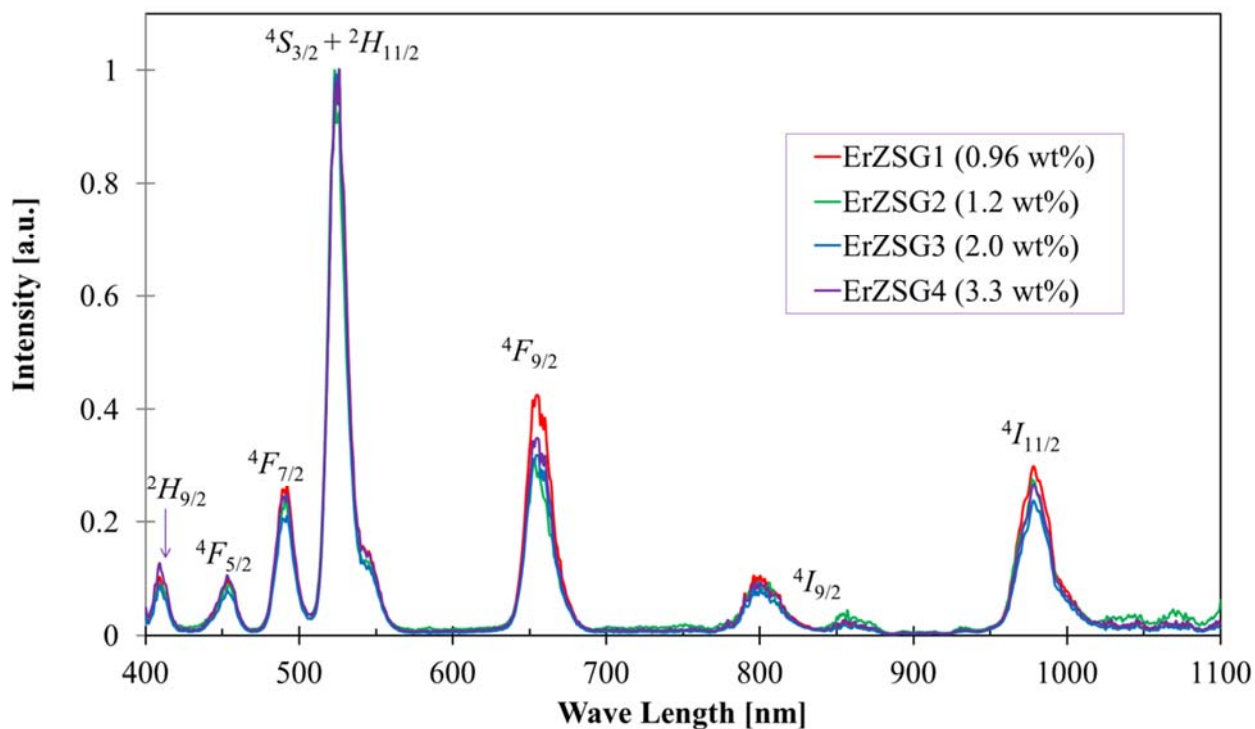


Fig. 4-8 ErZSG の蛍光励起スペクトル. 蛍光波長は 1530nm (${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$) である.

蛍光スペクトルをFig. 4-9 に示す. 励起波長は, 520 nm とした, 蛍光のピーク波長は ${}^4I_{13/2}$ から ${}^4I_{15/2}$ の遷移に相当する 1530 nmのみ観測され, その他の波長のピークは観測されなかった. 蛍光スペクトルの半値全幅 (FWHM ; Table 4-3) は, Er^{3+} の濃度に依存して広くなる傾向が見えた.

蛍光強度の時間緩和を、Fig. 4-10 に示す。蛍光寿命は、式 4-4で定義した関数を用いて計測した緩和曲線のフィッティングを行い、計算した。

$$I(t) = I_0 \exp(-t/\tau_{\text{meas}}) \tag{式 4-4}$$

ここで、 I_0 は初期の蛍光強度、そして τ_{meas} は蛍光寿命を示す (Table 4-3) ErZSG 1 (0.96 wt. %) で 4.26 ± 0.02 msであった蛍光寿命は、 Er^{3+} の濃度とともに減少し、ErZSG 4 (3.3 wt. %) では 0.79 ± 0.02 msまで短くなった。比較の為に、既報のシリカガラス[5-8]とリン酸ガラス[9]の結果も一覧にしている。残念ながら、ErZSG と同程度の Er^{3+} 添加濃度における、量子収率や蛍光寿命については、先行文献を見つけることができなかった。後程議論する通り、 τ_{meas} が長くなると量子収率は良くなる。ErZSG の Er^{3+} 添加濃度は他のシリカガラスと比較して高いにもかかわらず、 τ_{meas} は数msもの高い値を維持している。これは、ゼオライト法が Er^{3+} の高濃度添加と比較的長い τ_{meas} を両立していることを意味している。

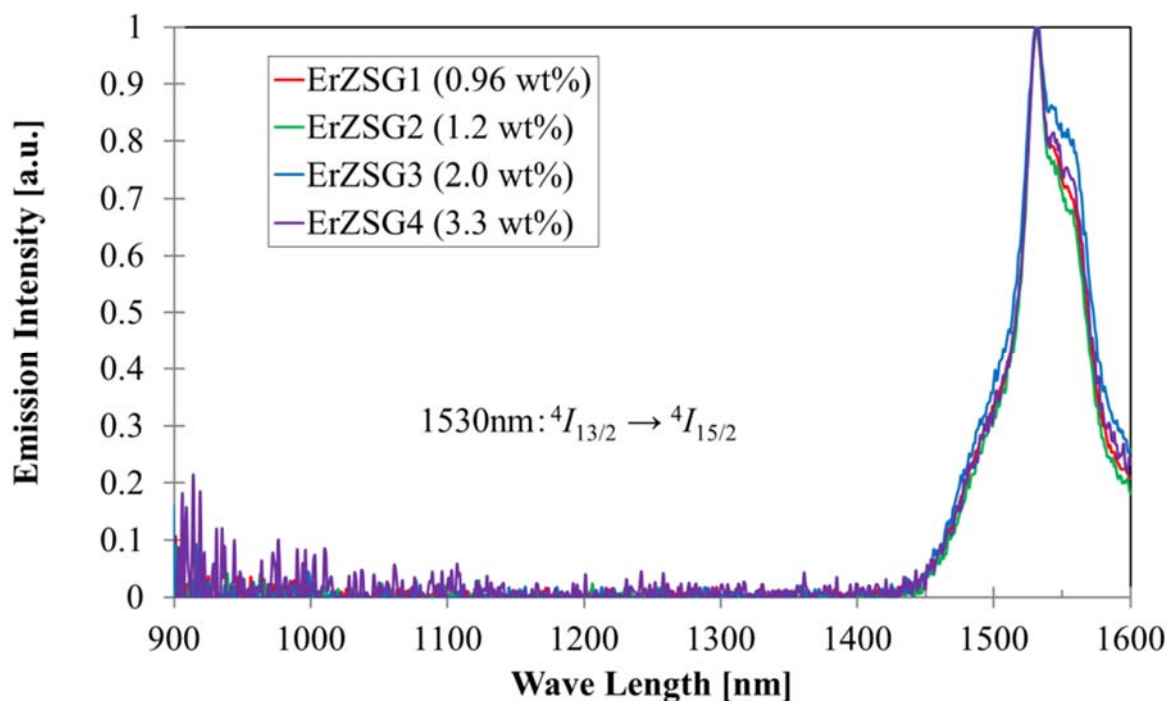


Fig. 4-9 ErZSG の蛍光スペクトル。励起波長は、520nm とした。

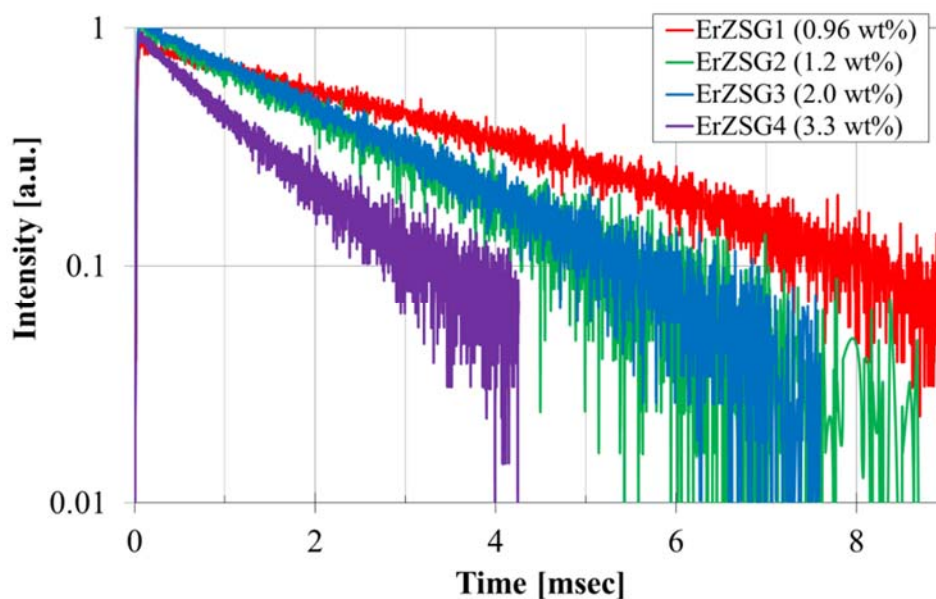


Fig. 4-10 ErZSG の蛍光強度の時間緩和.

Table 4-3 $^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 遷移の蛍光スペクトル FWHM, 量子収率(η)及び蛍光寿命(τ_{meas}) の比較結果.

材質	Er ³⁺ doping method	Er ³⁺ [wt. %]	Yb ³⁺ [wt. %]	FWHM [nm]	Quantum Efficiency, η	τ_{meas} [ms]	Reference
シリカガラス	Solution doping (Er-doped nanoparticles)	0.22	-	NA	NA	11.7	[7]
シリカガラス (Alumino-phospho-silicate)	Solution doping (Er solution)	0.32	-	NA	NA	11	[5]
シリカガラス	Laser sintering	0.55	2.55	NA	NA	8.39	[8]
シリカガラス	Solution doping (Er solution)	0.60	-	52	77.9 %	7.28	[6]
シリカガラス	Zeolite method	0.96 (0.12 mol %)	-	51	45.1 ± 3.3 %	4.26 ± 0.02	本研究 (ErZSG)
		1.2 (0.15 mol %)	-	50	25.2 ± 1.9 %	2.38 ± 0.02	
		2.0 (0.24 mol %)	-	59	25.5 ± 1.9 %	2.41 ± 0.01	
		3.3 (0.41 mol %)	-	54	8.4 ± 0.6 %	0.79 ± 0.02	
リン酸ガラス	-	NA (0.1 mol %)	-	61	~ 22 %	1.069	[9]

Table 4-4 各ガラスにおける, Er³⁺のJOパラメータ.

材質	$\Omega_2 [10^{-20} \text{ cm}^{-2}]$	$\Omega_4 [10^{-20} \text{ cm}^{-2}]$	$\Omega_6 [10^{-20} \text{ cm}^{-2}]$	Reference
ErZSG 3	11.9	2.47	2.62	本研究
シリカガラス	8.36	1.76	0.82	[8]
シリカガラス	7.93	1.70	1.13	[6]
フッ化物ガラス	2.91	1.78	1.00	[10]
リン酸ガラス	3.53	0.76	0.56	[11]

Table 4-5 ErZSG 3 中の Er³⁺における, 遷移線強度の計算値および理論値.

$^{2S+1}L_J$	λ_c	$S_{\text{abs}} [10^{-20} \text{ cm}^{-2}]$	$S_{\text{JO}} [10^{-20} \text{ cm}^{-2}]$
$^2H_{9/2}$	408 nm	0.534	0.638
$^4F_{5/2}$	450 nm	0.619	0.585
$^4F_{7/2}$	488 nm	1.519	2.006
$^4S_{3/2} + ^2H_{11/2}$	524 nm	10.29	10.28
$^4F_{9/2}$	657 nm	2.444	2.533
$^4I_{9/2}$	812 nm	0.906	0.454
$^4I_{11/2}$	971 nm	1.017	1.371
$^4I_{13/2}$	1516 nm	4.621	4.274

Er³⁺の基底状態 ($^4I_{15/2}$) から励起状態 ($^{2S+1}L_J$) への遷移線強度は, 吸収スペクトル $\alpha(\lambda)$ から式 4-5を用いて計算できる[12-14].

$$S_{\text{Abs}, ^4I_{15/2} \rightarrow ^{2S+1}L_J} = \frac{3ch(2J+1)}{8\pi^3 e^2 \lambda_c \rho} \cdot \frac{9n(\lambda)}{(n(\lambda)^2 + 2)^2} \cdot \int_{^4I_{15/2} \rightarrow ^{2S+1}L_J} \alpha(\lambda) d\lambda \quad \text{式 4-5}$$

ここで, e は電荷素量 (esu単位), c は光速, J は基底状態の全角運動量15/2, λ_c は遷移の中心波長, ρ はEr³⁺の数密度, n は媒質の屈折率をそれぞれ示す.

一方, Judd-OfeltらのJO理論[12-14]によると, 遷移線強度は式 4-6のように示すこともできる.

$$S_{\text{JO}, ^4I_{15/2} \rightarrow ^{2S+1}L_J} = \sum_{t=2,4,6} \Omega_t \|\langle ^4I_{15/2} | U^t | ^{2S+1}L_J \rangle\|^2 \quad \text{式 4-6}$$

ここで、 Ω_t ($t=2,4,6$) はJOパラメータ、 $\| \langle {}^4I_{15/2} | U^t | {}^{2S+1}L_J \rangle \|^2$ は基底状態から任意の励起状態への遷移行列要素である。遷移行列要素は文献値が[15]与えられていることから、式 4-5と式 4-6を用いて、最小二乗法を用いてJOパラメータが求まる。JO解析にはFig. 4-7で示した吸収スペクトルを用い、 $\rho=1.57 \times 10^{20}$ 個/cm³ (Table 1)、 n は n_{ErZSG3} を用いた。JO解析の結果を、Table 4-4にまとめた。またErZSG 3の遷移線強度をTable 4-5にまとめた。蛍光寿命の理論値 τ_{rad} は式 4-7により、求まる。

$$\tau_{\text{rad}}^{-1} = \frac{64\pi^4 e^2}{3h(2J+1)\lambda_c^3} \cdot \frac{(n(\lambda)^2 + 2)^2}{9n(\lambda)} \cdot S_{\text{JO}, {}^4I_{15/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}} \quad \text{式 4-7}$$

τ_{rad} は、 9.4 ± 0.7 msと計算された。 τ_{rad} から蛍光の量子収率は、Table 4-3で示した蛍光寿命の実測値(τ_{meas})を用いて、式 (8) から計算できる。

$$\eta = \frac{\tau_{\text{meas}}}{\tau_{\text{rad}}} \quad \text{式 4-8}$$

量子収率 η は、ErZSG 1 (0.96 wt. %)では、 45.1 ± 3.3 %と計算された。さらに、 η は濃度の増加とともに減少しErZSG 4 (3.3 wt. %)では 8.4 % へと下がった (Table 4-3)。

Er^{3+} イオンの添加濃度に対して蛍光寿命 τ_{meas} と蛍光量子収率 η プロットした結果を、Fig. 4-11に示した。比較のために、先行研究の結果も併せてプロットした[6, 8]。蛍光寿命と蛍光量子収率は、十分大きな値を示しているが、先行例よりもやや小さくなった。これは、隣接する Er^{3+} へのエネルギー移動による濃度消光と、非輻射遷移による失活を想定することができる[16]。非輻射遷移による失活は、孤立している Er^{3+} イオンと、ホストマテリアルの格子振動の相互作用による、マルチフォノン過程で理解できる。FT-IR を用いて計測した赤外域の透過スペクトル (Fig. 4-6) では、 3670 cm^{-1} (波長 $2.72 \mu\text{m}$) に OH 基の基本振動に相当するピークが確認できた。この倍波振動は、 7340 cm^{-1} ($1.36 \mu\text{m}$) に相当し、 Er^{3+} の蛍光を失活させている可能性は十分想定できる。UV-VIS で計測した吸収スペクトル(Fig. 4-7)では、直接波長 $1.36 \mu\text{m}$ に吸収ピークを確認することはできなかった。しかしながら ErZSG 3 に含まれる OH 基濃度は 76 wt. ppm と、OH 基による Er^{3+} の蛍光消光を想定している先行研究の値、16 wt. ppm[8]よりもはるかに高い。したがって、OH 基による非輻射遷移が ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ 遷移の蛍光を失活させた可能性は十分に想定できる。ゼオライトをはじめとした原材料を真空中で加熱脱水することで、ErZSG の量子収率をさらに改善できると考える。

蛍光スペクトルのFWHMは、低濃度域では先行研究とほとんど同じ値であったが、より高濃度ではFWHMが広がる傾向が観察された(Table 4-3)。Table 4-4にまとめたようにErZSG 3は先行研究と比較して Ω_2 が大きくなった[6, 8]。 Ω_2 は、 Er^{3+} イオンと、 Er^{3+} イオンを取り巻くホストマテリアルであるガラスとの環境と密接に関連しており、具体的には以下の2つの因子に依存して変化す

る。第一に、Er-Oの共有結合性が強くなると、 Ω_2 は大きくなる[17]。実際、シリカガラス中のEr³⁺イオンが示す Ω_2 は、イオン結合性が強く共有結合性が弱い、フッ化物ガラス[10]やリン酸ガラス[11]中のEr³⁺イオンが示すそれに対して、高い値を有している(Table 4-4)。第二に、Er³⁺イオンへの配位子の対称性が下がると、 Ω_2 は大きくなる[18]。シリカガラス間で比較した場合、 Ω_2 はEr³⁺イオン周囲の局所構造を反映している可能性がある。その結果ErZSG 3の比較的大きな Ω_2 は、ErZSG 3では、Er³⁺イオン周囲の結晶場の対称性が悪く、不均一である可能性を示唆している。その結果、蛍光スペクトルのFWHMも広がっている可能性がある。ErZSG 3 (2.0 wt.%)がなぜ最も広い蛍光スペクトルのFWHMを有しているか説明するにはErZSGの構造解析をさらに実施する必要がある。

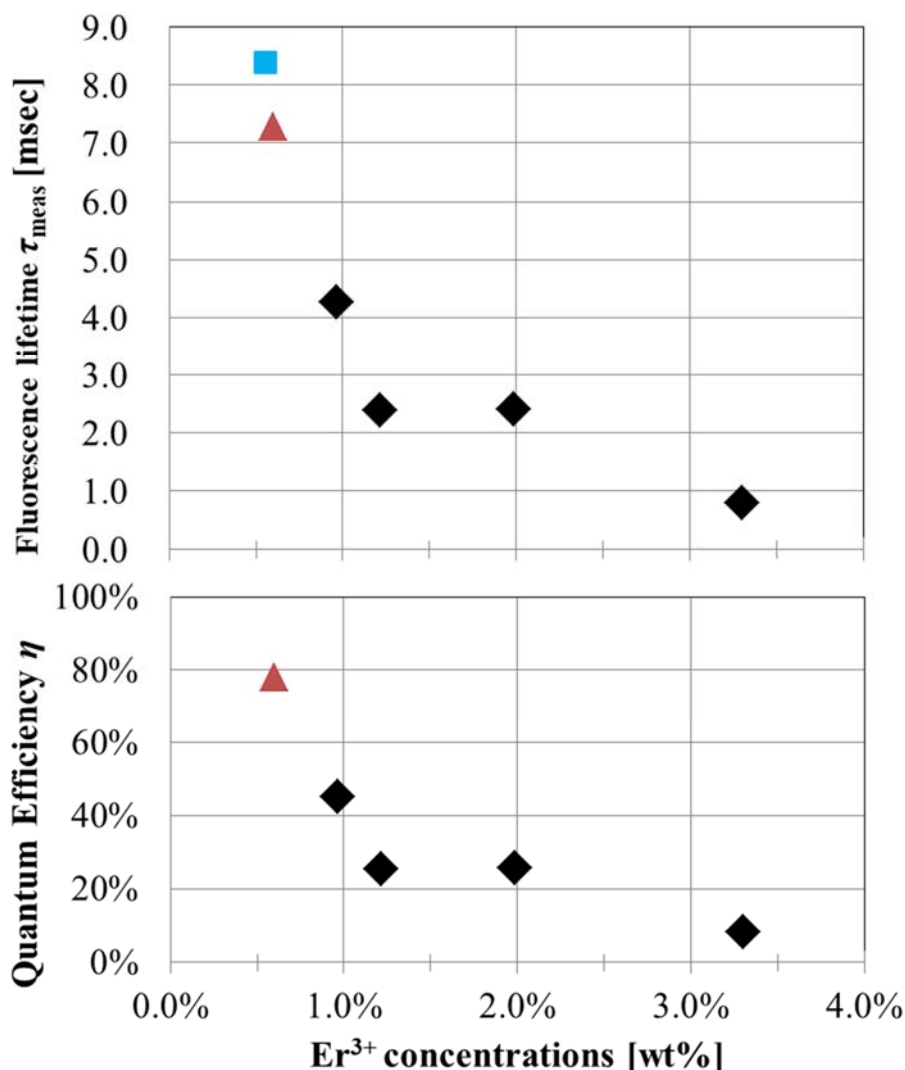


Fig. 4-11 蛍光量収率と蛍光寿命の Er³⁺ 添加濃度依存性。本研究の結果は◆，先行研究の結果は，▲[6]及び■[8] で示した。

希土類イオンのクラスター形成を抑制させるために、ポーラス状のシリカガラスを、 Er^{3+} [5, 6]やErが添加されたナノ粒子[7]を含む水溶液に浸漬させる方法が提案されている。他にもプラズマ放電によって生じる熱を用いて、蛍光体をポーラス状のシリカガラスに熱拡散させる手法も提案されている[19]。しかしながら、これらの手法は、 Er^{3+} の濃度を任意に調整することが困難である問題があった。ゼオライト法は任意に濃度変更が可能であり、応用が期待できる。

4.3. 参考文献

- [1] Y. Fujimoto, M. Nakatsuka, A novel method for uniform dispersion of the rare earth ions in SiO_2 glass using zeolite X, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 215 (1997) 182-191.
- [2] I.H. Malitson, Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica*,†, *J. Opt. Soc. Am.*, 55 (1965) 1205-1209.
- [3] Y. Morimoto, T. Igarashi, H. Sugahara, S. Nasu, Analysis of gas release from vitreous silica, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 139 (1992) 35-46.
- [4] CRC handbook of chemistry and physics : a ready-reference book of chemical and physical data, 92nd ed., 2011 - 2012 ed., CRC Press, Boca Raton, Fla. u.a., 2011.
- [5] M.P. Lord, L. Talbot, O. Boily, T. Boilard, G. Gariépy, S. Grelet, P. Paradis, V. Boulanger, N. Gregoire, S. Morency, Y. Messaddeq, M. Bernier, Erbium-doped aluminophosphosilicate all-fiber laser operating at 1584 nm, *Opt Express*, 28 (2020) 3378-3387.
- [6] D. Ning, Q. Yanbo, Y. Lüyun, P. Mingying, W. Chen, Z. Qingling, Z. Chongjun, Q. Jianrong, Z. Congshan, C. Danping, A. Tomoko, High Quantum Efficiency and High Concentration Erbium-Doped Silica Glasses Fabricated by Sintering Nanoporous Glasses, *Journal of Rare Earths*, 24 (2006) 761-764.
- [7] C.C. Baker, E.J. Friebele, A.A. Burdett, D.L. Rhonehouse, J. Fontana, W. Kim, S.R. Bowman, L.B. Shaw, J. Sanghera, J. Zhang, R. Pattnaik, M. Dubinskii, J. Ballato, C. Kucera, A. Vargas, A. Hemming, N. Simakov, J. Haub, Nanoparticle doping for high power fiber lasers at eye-safer wavelengths, *Opt Express*, 25 (2017) 13903-13915.
- [8] W. Zhang, J. Liu, G. Zhou, C. Xia, S. Liang, Y. Chen, Z. Hou, Optical properties of the Yb/Er co-doped silica glass prepared by laser sintering technology, *Opt. Mater. Express*, 7 (2017) 1708-1715.
- [9] P. Babu, H.J. Seo, K.H. Jang, R. Balakrishnaiah, C.K. Jayasankar, K.-S. Lim, V. Lavín, Optical spectroscopy, 15 μm emission, and upconversion properties of Er^{3+} -doped metaphosphate laser glasses, *J. Opt. Soc. Am. B*, 24 (2007) 2218-2228.
- [10] L. Wetenkamp, G.F. West, H. Többen, Optical properties of rare earth-doped ZBLAN glasses, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 140 (1992) 35-40.
- [11] S. Liu, H. Li, Y. Tang, L. Hu, Fabrication and spectroscopic properties of Yb^{3+} -doped silica glasses using the sol-gel method, *Chin. Opt. Lett.*, 10 (2012) 081601.
- [12] B.R. Judd, Optical Absorption Intensities of Rare-Earth Ions, *Physical Review*, 127 (1962) 750-761.

- [13] G.S. Ofelt, Intensities of Crystal Spectra of Rare - Earth Ions, *The Journal of Chemical Physics*, 37 (1962) 511-520.
- [14] W. Krupke, Induced-emission cross sections in neodymium laser glasses, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 10 (1974) 450-457.
- [15] W.T. Carnall, P.R. Fields, K. Rajnak, Electronic Energy Levels in the Trivalent Lanthanide Aquo Ions. I. Pr³⁺, Nd³⁺, Pm³⁺, Sm³⁺, Dy³⁺, Ho³⁺, Er³⁺, and Tm³⁺, *The Journal of Chemical Physics*, 49 (1968) 4424-4442.
- [16] J.A. Caird, A.J. Ramponi, P.R. Staver, Quantum efficiency and excited-state relaxation dynamics in neodymium-doped phosphate laser glasses, *J. Opt. Soc. Am. B*, 8 (1991) 1391-1403.
- [17] C.K. Jørgensen, R. Reisfeld, Judd-Ofelt parameters and chemical bonding, *Journal of the Less Common Metals*, 93 (1983) 107-112.
- [18] S. Tanabe, T. Ohyagi, N. Soga, T. Hanada, Compositional dependence of Judd-Ofelt parameters of Er³⁺ ions in alkali-metal borate glasses, *Phys Rev B Condens Matter*, 46 (1992) 3305-3310.
- [19] B. Zhou, W. Luo, S. Liu, S. Gu, M. Lu, Y. Zhang, Y. Fan, W. Jiang, L. Wang, Enhancing the performance of Ce:YAG phosphor-in-silica-glass by controlling interface reaction, *Acta Materialia*, 130 (2017) 289-296.

第5章 結論及び今後の課題

第2章では、ガラス旋盤を用いてφ20mmのプリフォームを作製することで、Nd₂O₃を1.25wt.%含有するNd-SMFを作製する方法を確立した。Nd-SMFを用いて共振器長40mmのCWレーザーを提案し、短尺共振器ファイバーレーザーを実現した。そのスペックは、以下の通りとなった。

発振波長：1062.6 nm, 1071.2 nm

発振閾値：(実測) 5.6 mW, (直線近似) 22.0 mW, スロープ効率：14.6%, 最大出力：19.7 mW

ビーム品質：~1.0

シリカガラスシングルモードファイバーを用い、短尺共振器レーザーの構築可能なことを示した。

第3章では、Nd-SMFを用いてパルスレーザーを提案し、短尺共振器ファイバーレーザーを実現した。そのスペックは、以下の通りであった。

発振波長：1062.7 nm, 1090.8 nm

発振閾値：(実測) 8.3 mW, (直線近似) 13.0 mW, スロープ効率：20.8%. 最大出力：27.2 mW

繰り返し周波数：2.57GHz

また、本レーザーが、QML動作していることを明らかにした。シリカガラスファイバーで1GHzを超える高繰り返しを実現できたのは、本レーザーが初めてである。励起光源とシリカガラスファイバー、およびファブリペロー共振器を構成するミラーとSESAMのみの簡易な系で高繰り返しのパルス発振を実現できた。

Nd-SMFレーザーにおける今後の課題を以下に列挙する。

- ① 共振器長を40mmよりさらに短尺化し、レーザー発振を実現させること。
- ② オートコリレータなどを用いて、パルス発振時のパルス時間幅を計測すること。
- ③ ファイバーアンプなどを用いて、平均出力数W程度まで出力を増幅すること。
- ④ ③を用いて試料へとパルス照射し、レーザー加工実験を行うこと。

第4章では、ゼオライト法を用いたEr高濃度添加シリカガラスを提案し、有効性を確認した。そのEr添加濃度は、0.96 ~ 3.3 wt.%に達した。JO解析の結果、蛍光量子収率45 ~ 8%を達成した。Erにおいてもゼオライト法が有効であることを示し、短尺共振器レーザーが構築できる可能性を示した。

Er高濃度添加石英ガラスの作製におこる今後の課題を以下に列挙する。

- ① ガラスに含まれるOH濃度を低減し、量子収率が改善するか実証する事。
- ② SMFを作製すること。
- ③ ②を用いて短尺共振器レーザーのレーザー発振を実現させること。

業績リスト

業績リスト

1) 学術論文（国際，査読あり）

1. Y. Yamasaki, R. Azuma, Y. Kagebayashi, K. Fujioka, Y. Fujimoto, Optical properties of Er³⁺ heavily doped silica glass fabricated by zeolite method, Journal of Non-Crystalline Solids, 543 (2020) 120149.
2. Y. Yamasaki, T. Hiraishi, Y. Kagebayashi, K. Fujioka, Y. Fujimoto, Short-length CW laser of Nd³⁺ heavily doped single-mode silica glass fiber fabricated by zeolite method, Optics Communications, 475 (2020) 126270.
3. Y. Yamasaki, T. Hiraishi, Y. Kagebayashi, K. Fujioka, Y. Fujimoto, 2.6-GHz fundamental repetition rate, Nd³⁺-doped single-mode silica fiber laser, fabricated by zeolite method, Optics Communications, To be submitted.

2) 学会発表

1. 国際会議発表（査読あり）

Yu. Yamasaki:

「Spectroscopic properties of heavily Er³⁺ doped silica glass」

The 8th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2019), ALPS-P2-01 (2019)

2. 国内学会

山崎 祐, 平石 隆之, 影林 由郎, 藤岡 加奈, 藤本 靖

「短尺共振器 Nd³⁺添加石英シングルモードファイバー(Nd-SMF)レーザー」: 第 81 回応用物理学会秋季学術講演, 8a-Z19-7 (2020 年)

3) 特許・知財

1. 出願中（公開前）

特許発明者：藤本 靖, 影林 由朗, 山崎 祐

特許出願人：ウシオ電機株式会社, 学校法人千葉工業大学

特許出願日：2020年6月19日

出願番号：特願2020-106620

2. 出願前

特許発明者：山崎 祐, 影林 由朗

特許出願人：ウシオ電機株式会社

特許出願日：出願手続き中

4) その他

なし

謝辞

謝辞

本論文の研究は、千葉工業大学大学院藤本研究室、大阪大学レーザー科学研究所、ウシオ電機株式会社において行った成果をまとめたものです。本研究を進めるにあたり多数の皆様にご指導・ご鞭撻を頂きました。ここに深く感謝申し上げます。

千葉工業大学大学院工学研究科、藤本靖教授には、2014年から開始した共同研究も含めると、7年にも渡り一方ならぬご指導とご援助をいただきました。研究方針の決め方から実験方法、論文へのまとめ方、投稿に至るまで、多岐に亘って直接ご指導いただきました。これら終始熱心にご指導いただいたことに加え、研究室のある千葉県と私の居住地である兵庫県は距離が離れていること、COVID-19に伴い往来が自粛されたこと、企業に所属したまま研究室へ受け入れていただいたことなど、先生には大変ご迷惑をお掛け致しましたが、格別なご配慮を賜り研究を進めることができました。ここに、深厚なる謝意を表します。

本論文をまとめるにあたり、千葉工業大学大学院工学研究科、小田昭紀教授、水津光司教授、陶良教授、長瀬亮教授、東京大学物性研究所、小林洋平教授にはお忙しい中、多岐に渡るご指導をいただきました。ここに深く感謝申し上げます。

大阪大学レーザー科学研究所、藤岡加奈准教授には試料の作製・光学計測で大変ご協力いただきました。ここに深く感謝申し上げます。

ウシオ電機株式会社の皆様には、研究をさせていただく機会と環境を与えていただきました。中野哲男副本部長、河本雅人副事業部長、平尾哲治部門長及び、要素開発部の森和之部長には深く感謝申し上げます。要素開発部次長の影林由郎博士には博士後期課程に進むきっかけも与えて頂きました。深く感謝申し上げます。要素開発部の平石隆之氏、野崎新一朗氏、東りえこ氏には、試料の作製、実験や結果の議論にて大変お世話になりました。深く感謝申し上げます。また、有本智良氏、加瀬征彦博士、松島竹夫氏、横森岳彦氏、佐々木雄一氏、谷野賢二氏、山根巧氏、阿相一起氏、池喜匡氏、幸貴史氏には、日々の議論、叱咤激励に至るまで大変お世話になりました。深く感謝申し上げます。

最後に、博士課程に進むことを快諾し、研究の実施と論文をまとめる機会・環境を与えてくれた妻の涼子、長男の陸、長女の莉帆には感謝したいと思います。ありがとう。

2021年3月 山崎祐