

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 30 年 6 月 27 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04696

研究課題名(和文) 異種光学材料複合化技術を用いた中赤外高出力フッ化物ガラスレーザーの開発

研究課題名(英文) Development of mid-infrared high-power fluoride glass lasers using composite optical materials

研究代表者

時田 茂樹 (Shigeki, Tokita)

大阪大学・レーザー科学研究所・講師

研究者番号：20456825

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：固体レーザー技術の進展により、小型・高効率かつ信頼性の高い高出力レーザー光源が産業・医療・科学などの分野で実用に供されるようになった。レーザー光源への要求は益々高度化・多様化しており、高出力化、短パルス化、高効率化、新波長帯開発など、様々な研究開発が行われている。本研究では挑戦的な課題の一つである中赤外域における新波長帯開発に着目し、Er添加材料を用いた高効率な2.8マイクロメートル帯固体レーザー光源を開発した。

研究成果の概要(英文)：With the progress of solid-state laser technology, compact, highly efficient, highly reliable, and high-power laser light sources have been put to practical use in industrial, medical, scientific and other fields. Demands for laser light sources are becoming sophisticated and diversified, so various researches aiming such as high power, short pulse, high efficiency, new wavelength band. In this research, focusing on the development of a new wavelength band in the mid-infrared region which is one of the challenging issue, we developed a highly efficient 2.8-micrometer-band solid-state laser source using Er-doped materials.

研究分野：光工学・光量子科学

キーワード：レーザー 中赤外

### 1. 研究開始当初の背景

固体レーザー技術の進展により、小型・高効率かつ信頼性の高い高出力レーザー光源が産業・医療・科学などの分野で実用に供されるようになった。レーザー光源への要求は益々高度化・多様化しており、高出力化、短パルス化、高効率化、新波長帯開発など、様々な研究開発が行われている。本研究では挑戦的な課題の一つである中赤外域における新波長帯開発に注目する。

近年の携帯電話、太陽電池、MEMS等の製造に不可欠となっているレーザー微細加工に適したピコ秒パルスレーザーを例にとると、加工応用に必要なおよそ0.1 mJ以上のパルスエネルギーを実用的な装置規模で得られるパルスレーザーとしては、0.8 μm帯のTiレーザー、1 μm帯のYbレーザー、1.5 μm帯のErレーザー、2 μm帯のHo及びTmレーザーが挙げられ、これらの波長の2~4倍高調波もしばしば用いられる。したがって0.2~2 μmの波長域では、多用途へ応用可能な実用光源が揃っている。

一方、およそ2 μmを超える長波長域においては、大型の自由電子レーザー、又は、効率が低く高出力化が困難な波長変換レーザーが在るのみで、実用的な光源が存在しない。長波長レーザーの実用化が難しい背景として、適切な固体レーザー媒質がないこと、石英等の一般的な光学ガラスの赤外吸収端を超える波長であることが挙げられる。しかし、中赤外コヒーレント光に対する要求は医療・産業の分野で特に大きく、その高い有用性が広く認識されている。例えば、3 μm付近のOH基への高い吸収性を利用した潜在的応用が多数存在する。中赤外域の実用光源の不在は、そのような応用技術の発展の障壁となっている。この現状を打開するために本研究では、2.8 μm帯の先進光源技術を提供する。

### 2. 研究の目的

医療や微細加工などの分野で特に求められる中赤外波長域の高出力短パルスレーザー光源は、いまだ未開拓であり基礎技術の確立を要する。本研究の目的は、半導体レーザー励起Er添加固体レーザーにより2.8 μm帯の小型・高ピーク出力パルスレーザーの基礎技術を確認することである。

### 3. 研究の方法

中赤外域の高ピーク出力パルスレーザーを実現するため、2.8 μm帯で利得が得られるEr添加固体材料をレーザー媒質として用いる。Er添加固体レーザー材料の候補として、Er添加フッ化物ガラスとEr添加セスキ酸化物結晶が挙げられる。フッ化物ガラスは、近紫外から中赤外域にまたがる幅広い透過波長域を有し、希土類イオン添加時の発光効率が優れているため、レーザーホスト材料として高い潜在能力を秘めている。しかし、耐湿性、耐熱性、機械強度が著しく低いため実用

性に乏しい。本研究では、フッ化物ガラスの優れた光学特性と、結晶の優れた熱的・機械的特性を併せもつ新しい複合光学媒質の開発を試みた。しかし、フッ化物ガラスと結晶の接合方法の開発が遅れたため、Er添加セスキ酸化物結晶を用いた中赤外レーザーの開発を並行して実施した。Er添加セスキ酸化物結晶は、比較的低いフォノンエネルギーを有するため、2.8 μm帯での発光効率高い。また、高い熱伝導率を有するため、高平均出力動作が期待できる。本研究では、Er添加Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>セラミックスを用い、高出力連続波レーザーならびにQスイッチパルスレーザーの開発を実施した。

### 4. 研究成果

11at. %-Er添加Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>透明セラミック結晶(長さ8 mm)を2枚の平面ミラーを用いた長さ約12 mmの共振器内に導入し、中心波長976 nmの半導体レーザーを結晶中に集光することで励起した。出力ミラーは波長2.9 μmで反射率97.5%のものを用い、2.5~3.1 μmのみを透過するバンドパスフィルターを通った後、出力パワーと時間波形をそれぞれパワーメーターとInAs検出器で測定した。発振特性についてより詳細に検討するため、分光器を用いて時間分解スペクトルを測定した。

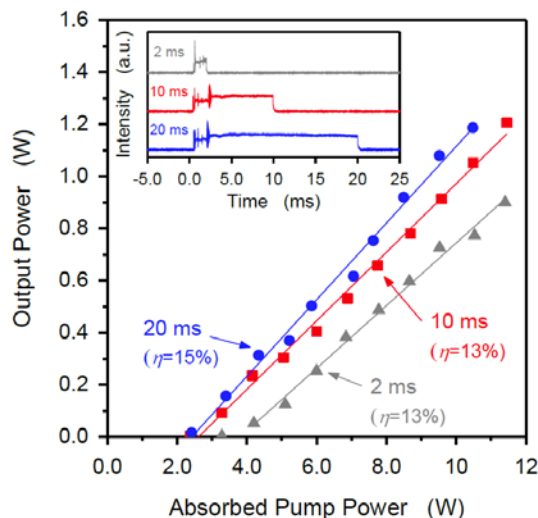


図1 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>レーザーの入出力特性

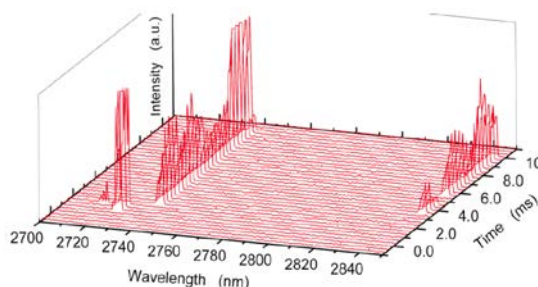


図2 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>レーザーの発振スペクトル

図1に、各励起パルス幅(duty比はいずれも2%)におけるレーザー入出力特性と時間波形を示す。パルス幅が長くなるに従って、

発振効率が高く、閾値が低くなっている。励起パルス幅 20 ms において、15%のスロープ効率と約 2 W の閾値を有し、約 10 W 励起で 1.2W のピーク出力を達成した。また、時間波形を見ると、いずれのパルス幅においても、1ms 以内の立上がり時間で発振し、約 2.5ms までにかけて出力に顕著な揺らぎが確認された。図 2 に、10 ms パルス励起における時間分解スペクトルを示す。励起パワーは図 1 中の時間波形と同じ 7 W である。波形に揺らぎが確認された約 2 ms までの時間スケールにおいて、2715, 2725 nm の 2 波長帯で発振し、それ以降は 2740, 2840 nm の 2 波長帯で発振しているのがわかる。このような発振波長が長波長シフトする現象は、これまでにも Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 結晶で報告されており、短波長側での再吸収が原因と考えられる。2 ms 励起の場合、短波長側のみが発振するため、効率が低かったと推測される (図 1)。これらの結果から、CW 励起の場合、長波長側の 2 波長帯のみでの発振が推測される。本システムにおいて、すでに室温での CW 動作も確認しており、現段階ではスロープ効率 17%、発振閾値約 1 を達成した。これは現在 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックレーザーで報告されている最高効率である。

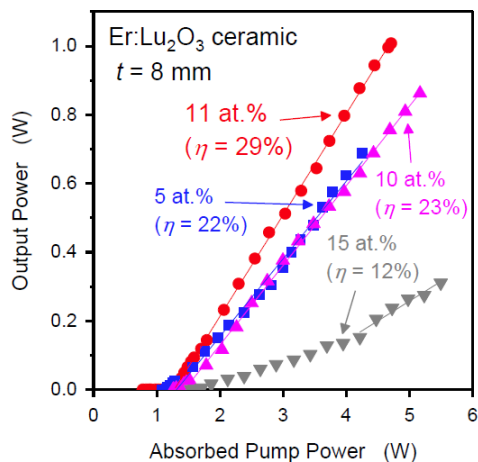


図 3 レーザー効率の Er 濃度依存性

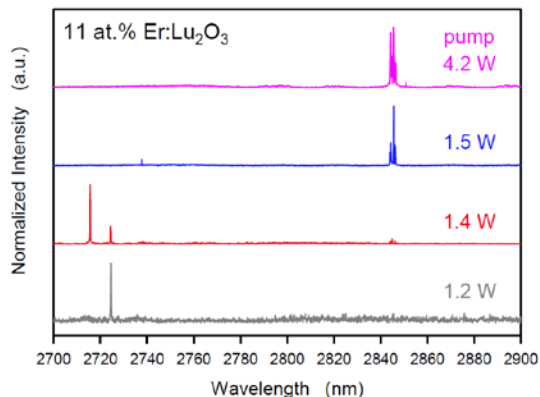


図 4 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> レーザーの発振スペクトル

さらなる高効率・高出力化のため、Er<sup>3+</sup>添加濃度依存性について調査した。レーザー媒

質として、Er<sup>3+</sup>添加 Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 透光性セラミックス (添加濃度 : 5, 10, 11, 15 at.%) を用いた。2 枚の平面ミラーを組み合わせた共振器内に、20°C で水冷した Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を導入し、中心波長 970 m の LD で励起することで cw 発振特性を評価した。図 3 に入出力特性を示す。15 at.% サンプルは効率が著しく低く、濃度消光が生じている可能性が考えられる。濃度 5, 10, 15 at.% においてスロープ効率は 20% 以上であり、特に 11 at.% サンプルでは最高効率 29% を達成した。また、励起パワー 10 W における出力は 2.3 W であった。これは現在 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックレーザーで報告されている最高効率・最高出力である。図 4 に 11 at.% サンプルの発振スペクトルを示す。しきい値付近では波長 2720 nm 近傍で、励起パワー 1.5 W 以上では 2845 nm で発振していることがわかった。Er<sup>3+</sup>添加濃度によって効率が変化した原因のひとつとして、Er<sup>3+</sup>イオン濃度の増加に伴い、レーザー下準位 (<sup>4</sup>I<sub>13/2</sub>) イオン間での協同アップコンバージョンが促進し、下準位の寿命が短くなることが考えられる。濃度依存性について、より考察を深めるため、今後、寿命測定を行う予定である。また、各サンプルの透過スペクトル測定をおこなった結果、セラミックスの光学品質が発振性能に寄与している可能性が示唆された。

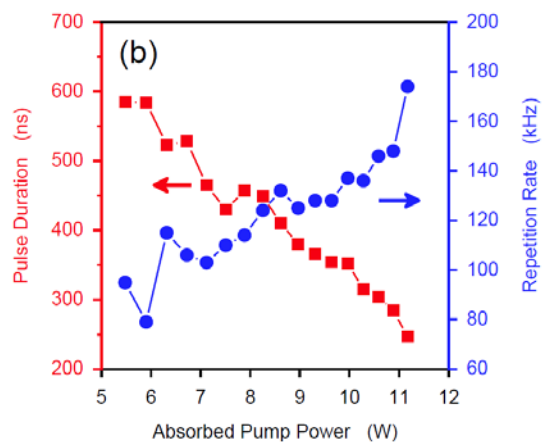
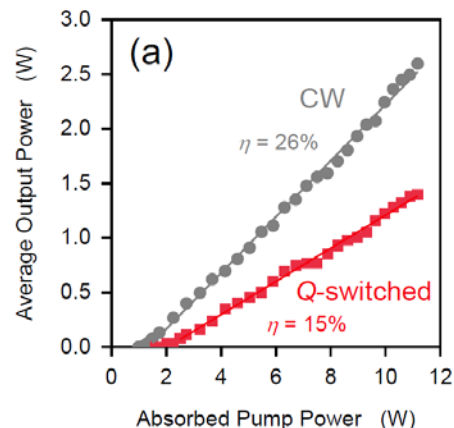


図 5 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> レーザーの発振スペクトル

高ピーク出力化を図るため、グラフェンを可飽和吸収体として用いた受動 Q スイッチ

ングによるパルス発振を試みた。レーザー媒質として、11 at.% Er<sup>3+</sup>添加 Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 透光性セラミックを用いた。2枚の平面ミラー (OC透過率 5%) を組み合わせた共振器内に、20°C で水冷した Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と単原子層のグラフェンを挿入し、中心波長 970 nm の LD で励起することで発振特性を評価した。

図 5(a)に平均出力、(b)に Q スイッチパルス幅と繰り返し周波数を示す。cw 動作において、現在 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックレーザーで報告されている最高出力である 2.6 W (11 W 励起時) を得た。グラフェン挿入時、図 6 に示したパルス列が得られ、安定した Q スイッチパルス動作を確認した。10.6 W 励起時、パルス幅 300 ns、繰り返し周波数 140 kHz、平均出力 1.3 W であった。励起パワーの増加にしたがってパルス幅が短くなり、繰り返し周波数が増加した。パルスエネルギーは最大で 9.4 μJ、ピーク出力 33 W であり、いずれも現在 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> で報告されている最大値である。

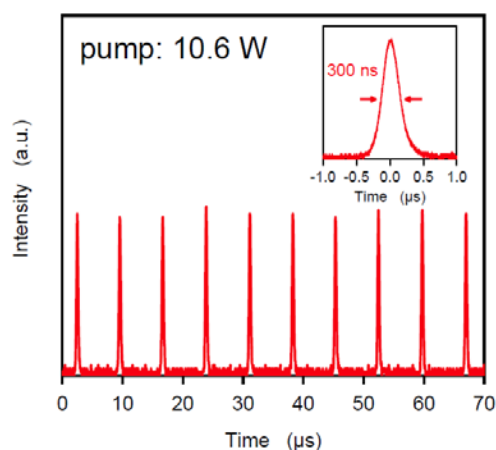


図 6 レーザーパルスの時間波形

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

①S. Tokita, S. Sakabe, T. Nagashima, M. Hashida and S. Inoue, “Strong sub-terahertz surface waves generated on a metal wire by high-intensity laser pulses”, *Scientific Reports* 5, 8267 (2015), 査読有.

DOI: 10.1038/srep08268

②S. Inoue, S. Tokita, M. Hashida, and S. Sakabe, “Transient changes in electric fields induced by interaction of ultraintense laser pulses with insulator and metal foils: Sustainable fields spanning several millimeters”, *Physical Review E* 91, 043101 (2015), 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevE.91.043101

③X. Guo, S. Tokita, K. Hirose, T. Sugiyama, A. Watanabe, K. Ishizaki, S. Noda, N. Miyanaga, and J. Kawanaka, “Demonstration of a photonic crystal surface-emitting laser pumped Yb:YAG”, *Optics Letters* 41, 4653 (2016), 査読有,

DOI: 10.1364/OL.41.004653

④S. Hwang, S. Tokita, T. Kawashima, H. Nishioka and J. Kawanaka, *Japanese Journal of Applied Physics* 55, 122702 (2016), 査読有.

DOI: 10.7567/JJAP.55.122702

⑤S. Inoue, K. Maeda, S. Tokita, K. Mori, K. Teramoto, M. Hashida, and S. Sakabe, “Single plasma mirror providing 10<sup>4</sup> contrast enhancement and 70% reflectivity for intense femtosecond lasers”, *Applied Optics* 55, 6435 (2016), 査読有.

DOI: 10.1364/AO.55.006435

⑥X. Guo, S. Tokita, X. Tu, Y. Zheng and J. Kawanaka, Prospects of obtaining terawatt class infrared pulses using standard optical parametric amplification, *Laser Physics* 27, 025403 (2017), 査読有.

DOI: 10.1088/1555-6611/aa555b

⑦U. Hiyori, Y. Ryo, S. Tokita, K. Junji, M. Masanao, S. Seiji, “Efficient continuous wave and quasi-continuous wave operation of a 2.8 μm Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic laser”, *Optics Express* 25, 18677 (2017), 査読有.

DOI: 10.1364/OE.25.018677

⑧U. Hiyori, S. Tokita, K. Junji, M. Masanao, S. Seiji, Y. Ryo, “Optimization of laser emission at 2.8 μm by Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramics”, *Optics Express* 26, 3497 (2018), 査読有.

DOI: 10.1364/OE.26.003497

⑨C. A. Schafer, H. Uehara, D. Konishi, S. Hattori, H. Matsukuma, M. Murakami, S. Shimizu, S. Tokita, “Fluoride-fiber-based side-pump coupler for high-power fiber lasers at 2.8 μm”, *Optics Letters* 43, 2340 (2018), 査読有.

DOI: 10.1364/OL.43.002340

[学会発表] (計 13 件)

①S. Tokita, S. Inoue, R. Yasuhara, K. Teramoto, T. Nagashima, M. Hashida, and S. Sakabe, “Strong sub-terahertz surface waves generated by relativistic laser pulses”, *Photonics West 2016*, 2016-02-13, 米国・サンフランシスコ.

②S. Tokita, M. Murakami, C. Schaefer, S. Hattori and S. Shimizu, “High Power 3 μm Erbium Fiber Lasers and Their Applications”, 2015-11-29, オーストラリア・アデレード.

③S. Tokita, M. Divoky, S. Hwang, K. Iyama, T. Kawashima, H. Nishioka, and J. Kawanaka, “Development of 1 J, 100 Hz Yb:YAG laser amplifier system for OPCPA pumping”, *The 11th Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2015-08-24, 韓国・釜山.

④S. Tokita, S. Hwang, T. Kawashima, H. Nishioka, and J. Kawanaka, “Pulse stretching in a narrow-band Yb:YAG regenerative amplifier using transmission gratings”, *The 11th Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2015-08-24, 韓国・釜山.

⑤S. Tokita, M. Divoky, S. Hwang, K. Iyama, T. Kawashima, and J. Kawanaka, “1 J, 100 Hz

Multiple Active-Mirror Laser Amplifier Using YAG /Yb:YAG Composite Ceramics”, The 4th Advanced Lasers and Photon Sources, 2015-04-22, 横浜.

⑥S. Tokita, S. Hwang, T. Kawashima, H. Nishioka, and J. Kawanaka, “Pulse stretching in a cryogenic-Yb:YAG regenerative amplifier using transmission gratings”, The 4th Advanced Lasers and Photon Sources, 2015-04-2, 横浜.

⑦上原日和, 安原亮, 時田茂樹, 村上政直, 清水政二, “2.8  $\mu\text{m}$  帯 Er 添加 Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックレーザーの発振特性評価”, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017-03-14, 横浜.

⑧上原日和, 安原亮, 時田茂樹, 河仲準二, 村上政直, 清水政二, “Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックレーザー発振特性の Er<sup>3+</sup> 添加濃度依存性”, 応用物理学会秋季学術講演会, 2017 年.

⑨H. Uehara, R. Yasuhara, S. Tokita, J. Kawanaka, M. Murakami, S. Shimizu, “Efficient Room Temperature CW Operation of Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Ceramic Laser at 2.8  $\mu\text{m}$ ”, Advanced Solid State Lasers Conference (ASSL), 2017 年.

⑩C. A. Schafer, D. Konishi, M. Murakami, S. Shimizu, S. Tokita, “7 W Er:ZBLAN Fiber Laser at 2.8  $\mu\text{m}$  Using a Fiber Side-Pump Combiner”, Advanced Solid State Lasers Conference (ASSL), 2017 年.

⑪C. A. Schafer, S. Hattori, M. Murakami, S. Shimizu, S. Tokita, “Towards a 20W-level industrial-grade Er:ZBLAN fiber laser at 2.8  $\mu\text{m}$ ”, Advanced Solid State Lasers Conference (ASSL), 2017 年.

⑫上原日和, 安原亮, 時田茂樹, 河仲準二, 村上政直, 清水政二, “高効率・高出力な 2.8  $\mu\text{m}$  帯 Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックレーザー”, レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会, 2018 年.

⑬上原日和, 時田茂樹, 河仲準二, 小西大介, 村上政直, 清水政二, 安原亮, “グラフェン可飽和吸収体を用いた 2.8  $\mu\text{m}$  帯 Q スイッチ Er:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックレーザー”, 応用物理学会春季学術講演会, 2018 年.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ

<http://www.ile.osaka-u.ac.jp/research/rdl/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

時田 茂樹 (TOKITA, Shigeki)

大阪大学・レーザー科学研究所・講師

研究者番号: 20456825

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 研究協力者

上原 日和 (UEHARA, Hiyori)

安原 亮 (YASUHARA, Ryo)

河仲 準二 (KAWANAKA, Junji)