

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：63903

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790069

研究課題名(和文) 中赤外領域における高繰り返しフェムト秒パルス光源の開発

研究課題名(英文) Development of a high-repetition-rate femtosecond light source in the mid infrared region

研究代表者

野村 雄高 (Nomura, Yutaka)

分子科学研究所・分子制御レーザー開発研究センター・助教

研究者番号：50526887

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：波長2 μm の領域で超短光パルスの発生を実現するために、ZBLANと呼ばれる赤外領域において低吸収かつ低分散のフッ化物ガラスからなる光ファイバーにツリウムを添加した物を用いて、レーザー発振器を開発した。このレーザー発振器をモード同期させることにより、時間幅41フェムト秒の超短光パルスを発生させることに成功した。これは波長2 μm 近傍で動作するレーザー発振器からの出力としては世界最短のパルス幅である。

研究成果の概要(英文)：To generate ultrashort pulses in 2 μm region, a laser oscillator is developed by using thulium-doped fibers made of fluoride glass known as ZBLAN, which has low absorption and low dispersion in the infrared region. By mode-locking the oscillator, pulses as short as 41 fs are obtained. These are the shortest pulses generated from laser oscillators operating around 2 μm region.

研究分野：光工学・光量子科学

キーワード：超短パルス ファイバーレーザー 中赤外 フッ化物

1. 研究開始当初の背景

波長 $2\ \mu\text{m}$ から $20\ \mu\text{m}$ に渡る中赤外領域は精密計測や生物学、医療への応用など様々な分野での応用が見込まれるため、この領域におけるコヒーレント光源の開発が注目を集めている。特に、時間幅がフェムト秒 (10^{-15} 秒) 領域にある超短レーザーパルスを用いることにより、超高速時間分解分光のみならず、広帯域に渡るスペクトルを利用した分光や、高強度を生かした非線形分光など多くの応用が見込まれる。

中赤外領域において広帯域フェムト秒光源を実現するにはトリウム添加ファイバーレーザーが有力である。トリウム添加ファイバーレーザーの利点は大きく二つある。

(1) 一つ目の利点はその広い発光スペクトルである。トリウムの発光スペクトルは波長 $1.6\ \mu\text{m}$ から $2.0\ \mu\text{m}$ まで広がっており、吸収スペクトルと重なっている分を差し引いても $1.8\ \mu\text{m}$ から $2.0\ \mu\text{m}$ という広い波長域において発振が期待できる。このスペクトル全域に渡って位相を揃えることが出来れば、原理的には 50 フェムト秒を切るような非常に時間幅の短いパルスを発生できると期待される。

(2) 二つ目の利点は、より長波長への波長変換に有利なことである。特に波長 $5\ \mu\text{m}$ 以上の分子の指紋領域と呼ばれる領域は、多くの分子振動に共鳴するため、分光学的に重要な波長域である。この波長域において広帯域のコヒーレント光源を得るためには、可視光や近赤外の光源を波長変換する必要があるが、通常非線形結晶は中赤外光を透過させないために実現が難しい。ここで、中赤外領域で高い透明性を持つヒ化ガリウム結晶を用いれば、 $5\ \mu\text{m}$ 以上の領域まで実現することができるが、この結晶は $1.7\ \mu\text{m}$ 以下の波長の光を吸収してしまうため、従来最も長波長の光源だったエルビウム添加ファイバーレーザー ($1.5\ \mu\text{m}$) でも基本波として用いることはできない。このため、波長 $2\ \mu\text{m}$ 近傍で発振するトリウム添加ファイバーレーザーを開発する意義がある。

2. 研究の目的

本研究では、トリウム添加ファイバーを用いたレーザーシステムを開発し、 $2\ \mu\text{m}$ 付近の波長領域におけるフェムト秒パルス光源を開発し、将来的な分光用の光源とすることを目的とする。特に、 $2\ \mu\text{m}$ 領域におけるフェムト秒パルス発振器については報告自体が少ないため、安定的にフェムト秒パルスを発生できる手法を確立することが重要である。そのために、トリウム添加ファイバーを用いてレーザー共振器を組み、ファイバーの長さや種類、共振器内の分散の変化によるパルス形状の変化を研究し、出力パワーやパルス幅、安定性などを評価する。これにより、時間幅 $100\ \text{fs}$ 以下のパルスの生成を目指す。

ス幅、安定性などを評価する。これにより、時間幅 $100\ \text{fs}$ 以下のパルスの生成を目指す。

3. 研究の方法

(1) 本研究では、ZBLAN と呼ばれるフッ化物ファイバーに着目した。一般に、ファイバーの材質としては、簡単に入手でき比較的取り扱いの容易な石英ガラスが用いられているが、パルス幅を短くするという観点からは、石英ガラスよりも分散の小さな物質でできたファイバーを用いることが出来れば、短パルス化に有利となる。特に、ZBLAN と呼ばれるフッ化物系ガラスでできたファイバーが有力である。ZBLAN は、 $2\ \mu\text{m}$ 近傍での分散の絶対値は石英ガラスの $1/10$ 程度、吸収は $1/100$ 程度と、この波長域の光に対するファイバーの材質として非常に優れた特性を持っている。ZBLAN ファイバーおよび石英ファイバーの分散特性を図 1 に示す。総分散は青い線で示したが、ZBLAN のほうがはるかに 0 に近いことがわかる。この分散が極めて小さいという特性のおかげで、ハイパワー化に向いているというファイバーレーザーの特長を生かしつつ、従来よりも時間幅の短いパルスを発生できる可能性がある。ZBLAN ファイバーはトリウム添加のものも無添加のものも市販されているため、それを使用してレーザー発振器に用いた。

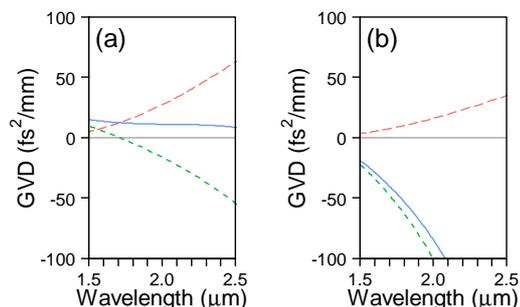


図 1: (a)ZBLAN ファイバーおよび (b)石英ファイバーの分散特性。

(2) 実際に開発したレーザー発振器を図 2 に示す。レーザー媒質としては、長さ $0.2\ \text{m}$ 、コア径 $6\ \mu\text{m}$ のトリウム添加 ZBLAN ファイバーを用い、この両端に同じコア径を持つ無添加 ZBLAN ファイバーを $1\ \text{m}$ ずつ接合した。励起光源としては最大出力 $200\ \text{mW}$ 、波長 $793\ \text{nm}$ のレーザーダイオードを 2 台用い、ファイバーの両方の端面からレンズによって結合させた。レーザー共振器はリング状に組み、非線形偏波回転でモード同期をかけるために、二枚の波長板 ($\lambda/2$, $\lambda/4$) および偏光子を共振器内に設置した。さらに、回折格子と球面鏡からなる分散補償光学系を設置することにより、わずかに存在する ZBLAN ファイバーの分散の影響を打ち消すことを試みた。また、この回折格子の 0 次反射光をレーザー共振器からの出力ポートとして用

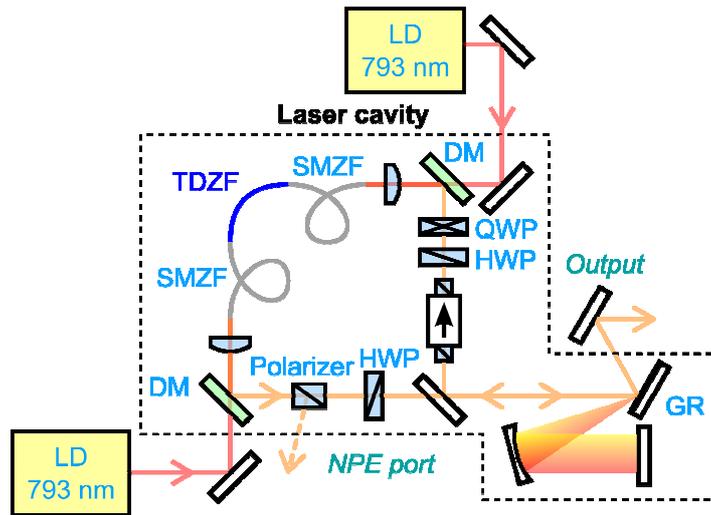


図 2: 開発したレーザー発振器の概略図。

いた。

このように光学素子を適切な位置に配置した上で、光路の調整を行って連続光発振させた。その後、各波長板の角度および回折格子の位置の調整を行うことで、モード同期を試みた。

(3) 上記のレーザー発振器は励起光源としてレーザーダイオードを二台必要とするため、システムが複雑かつ高価になることが弱点である。これは、シングルモードファイバーを用いた場合、励起光を効率よく結合するためにはビーム品質のよいレーザーダイオードを用いる必要があるが、そのようなレーザーダイオードは一般的に出力が低く、一台ではモード同期させるには励起パワーが不足するためである。これを解決するためには、ダブルクラッドファイバーと呼ばれる特殊ファイバーを用いればよい。これを用いれば、ビーム品質は劣るが安価で高出力なレーザーダイオードの出力を効率よくファイバーに結合することが可能となる。一方で、単位長さあたりの励起効率は下がるため、ファイバーの長さ自体は長くする必要があり、その分短パルス化は難しくなる。とは言え、ZBLAN ファイバーの分散は非常に小さいため、従来の発振器よりは短いパルスを期待できる。

そこで、長さ 4.4 m のトリウム添加ダブルクラッドファイバーおよび出力 1.4 W のレーザーダイオードを用いて(2)と同様のレーザー発振器を開発した。

4. 研究成果

(1) シングルモードファイバーを用いたレーザー発振器について、波長板および回折格子の調整により実際にモード同期が起きてパルス発振することは確認できたが、スペクト

ル幅が狭かったりマルチパルス動作していたりと、理想的な発振条件とは言い難い状態であったため、発振器の出力の挙動を観察しながら注意深く調整を進めた。その結果得られたスペクトルを図 3 に示す。赤い実線が得られたスペクトルであり、橙色の破線は同じスペクトルを対数軸でプロットしたものである。ノイズレベルはピークから 4 桁程下であり、光は波長 1680 nm から 2050 nm に渡る広帯域で発生していることがわかる。なお、スペクトルに見られる吸収線は空気中の水蒸気によるものと考えられるが、レーザー共振器を窒素パージした環境下でも観測されたため、測定装置自体の内部に含まれる水蒸気による吸収の寄与も大きいと考えられる。また、この時の出力は繰り返し周波数が 67.5 MHz のパルス列となっており、平均出力パワーが 38 mW であることから、一パルスあたりのエネルギーは 0.56 nJ であるといえる。

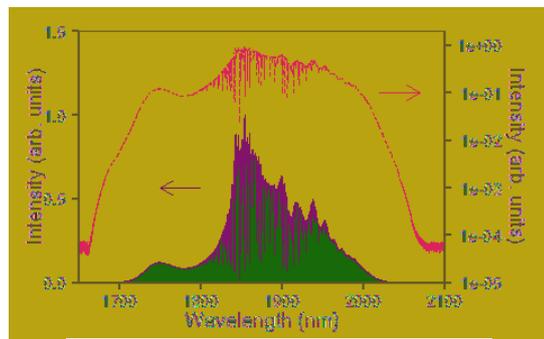


図 3: レーザー発振器から得られたスペクトル。

さらに、この出力のパルス幅を調べるために、周波数分解光ゲート (FROG) 法を用いることにした。FROG 法は可視光から波長 1 μm 程度の近赤外光の領域のパルスの時間幅を測定するのによく用いられる手法であ

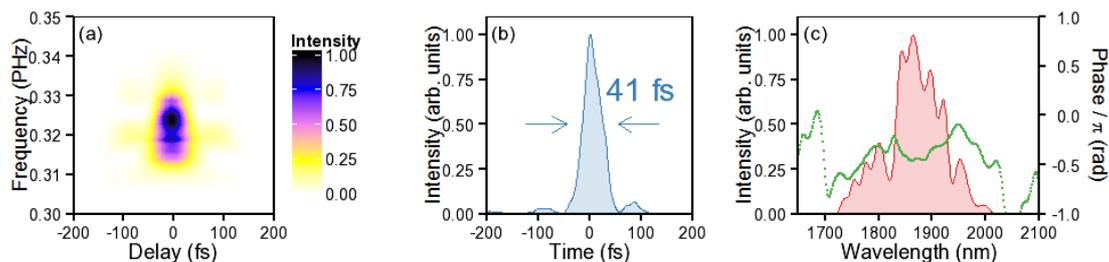


図 4: FROG 測定の結果。(a)測定されたスペクトログラム。(b)スペクトログラムを解析することによって得られたパルス波形。(c)同じく解析によって得られたスペクトル。

るが、 $2\ \mu\text{m}$ 領域において使用された報告例は少なく、市販の装置では対応できないため、自分で開発した装置を用いた。また、レーザー発振器からの出力はそのままでは位相が完全には揃っておらず、パルス幅が最も短い状態にはなっていないため、回折格子対を用いて分散補償をしてやることにより、パルス幅の最適化を試みた。最適化されたパルスを自作の FROG 装置によって測定した結果を図 4 に示す。FROG 測定によって得られるのは図 4(a)のようなスペクトログラム、すなわち 2 つに分けたパルスを遅延時間を変えながら重ねて測定されたスペクトルである。このスペクトログラムからパルス波形を求める手順は既に確立されているため、適切な解析操作を行うことにより図 4(b)のようなパルス波形が得られる。この解析の結果、得られたパルスの時間幅は 41 fs であることがわかった。これは、波長 $2\ \mu\text{m}$ の領域におけるレーザー発振器から直接発生したパルス幅としては世界最短である。また、スペクトログラムを解析するとスペクトルとその位相も図 4(c)のように得ることができる。図 3 とは分解能が異なるため、細かい形状は異なるが、おおまかな形状は一致していることがわかる。このことは、FROG 測定の信頼性が高いことを意味している。

すなわち、ZBLAN という分散の小さい物質で作られたファイバーを用いることにより、 $2\ \mu\text{m}$ 帯において従来よりも時間幅の短いパルスを発生させることに成功した。

(2) ダブルクラッドファイバーを用いて開発したレーザー発振器についても上記と同様の調整を行い、モード同期を試みた。その結果、繰り返し周波数 44 MHz でモード同期したパルスを得ることができた。このパルスを石英ガラス製のプリズム対を透過させることによって圧縮し、FROG 測定を行った結果、その時間幅が 90 fs となっていることがわかった。これはトリウム添加ダブルクラッドファイバーを用いて開発されたレーザー発振器からの出力としては最も短いパルス幅である。また、この際の実出力パワーは 20 mW であった。この効率は(1)の発振器に比べてかなり低い、その理由としては共振器が完全には最適化されていないことのほか、トリウ

ム添加ファイバーの長さがより長いために発生した光が再吸収されてしまっていることが考えられる。

このシステムの意義は、低品質だが安価なレーザーダイオードを用いた場合でも、時間幅が 100 fs を切るようなパルスを発生させることができたことにある。すなわち、従来のシステムより安価に従来のシステムより短いパルスを得ることができた。今後、共振器の最適化を進めることで、高出力化および短パルス化が期待できる。

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 2 件)

- ① Y. Nomura, M. Nishio, S. Kawato, and T. Fuji, Development of ultrafast laser oscillators based on thulium-doped ZBLAN fibers, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 査読有, Vol. 21, 2015, 900107, DOI: 10.1109/JSTQE.2014.2325533
- ② Y. Nomura and T. Fuji, Sub-50-fs pulse generation from thulium-doped ZBLAN fiber laser oscillator, Optics Express, 査読有, Vol. 22, 2014, pp. 12461–12466, DOI: 10.1364/OE.22.012461

[学会発表] (計 5 件)

- ① 野村雄高, 藤貴夫, トリウム添加 ZBLAN ファイバーによる $2\ \mu\text{m}$ モード同期レーザー、レーザー学会「ファイバーレーザー技術専門委員会」第 3 回公開研究会、2014 年 11 月 28 日、名古屋大学 (愛知県名古屋市)
- ② Y. Nomura, M. Nishio, S. Kawato, and T. Fuji, Mode-Locked Thulium-Doped ZBLAN Fiber Laser Oscillators at $2\ \mu\text{m}$, Advanced Solid State Lasers 2014, 2014 年 11 月 19 日、上海 (中国)

- ③ Y. Nomura, M. Nishio, S. Kawato, and T. Fuji, Ultrafast 2 μ m Laser Oscillators Based on Thulium-Doped ZBLAN Fibers, 19th International Conference on Ultrafast Phenomena, 2014年7月8日, 沖縄コンベンションセンター (沖縄県宜野湾市)
- ④ Y. Nomura, M. Nishio, S. Kawato, and T. Fuji, Development of Femtosecond Thulium-Doped ZBLAN Fiber Laser Oscillators, CLEO: 2014, 2014年6月10日, サンノゼ (米国)
- ⑤ 野村雄高、藤貴夫、ツリウム添加フッ化物ファイバーによるフェムト秒レーザーの開発、2014年春季第61回応用物理学会学術講演会、2014年3月18日、青山学院大学 (神奈川県相模原市)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1件)

名称：受動モードロックファイバレーザ装置

発明者：野村雄高、藤貴夫、三村榮紀、
小川和彦

権利者：大学共同利用機関法人自然科学研究
機構、ファイバーラボ株式会社

種類：特許

番号：特願 2014-31286

出願年月日：2014年2月21日

国内外の別：国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

野村 雄高 (Nomura, Yutaka)

分子科学研究所・分子制御レーザー開発研
究センター・助教

研究者番号：50526887