

新しいグリーン光ファイバレーザー

豊田工業大学 先端フotonテクノロジー研究センター

大石 泰丈

A new green fiber laser

Yasutake Ohishi

Research Center for Advanced Photon Technology

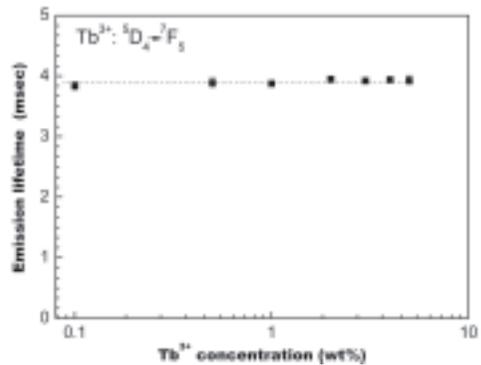
Toyota Technological Institute

1. はじめに

可視領域における高品質・高効率なレーザー光源や光増幅素子は、計測、加工、車載用通信分野等における応用が期待される。Tb³⁺を使ったグリーンレーザーは1970年前後に2, 3例パルスレーザー発振が報告されているが、連続発振(CW (Continuous Wave) 発振)は報告されていない⁽¹⁾⁻⁽³⁾。Tb³⁺添加石英ファイバの光学特性も調べられているが、レーザー光を入射するとフォトダークニングが起こり損失特性が劣化することが知られている⁽⁴⁾。我々は、0.54 μm帯に輻射遷移を有するTb³⁺イオンに注目し、種々のガラス導波路材料中でのTb³⁺の光増幅およびレーザー媒質としての可能性を研究し、緑色の波長領域である0.54 μm帯において世界ではじめてTb³⁺を用いた光信号増幅およびCWレーザー発振に成功した。ここでは、その概要を述べる。

2. Tb³⁺の光学特性

図1にガラス中のTb³⁺のJudd-Ofelt (J-O)解析および発光特性測定により求めたグリーン

図1 ZBLAN中Tb³⁺の発光寿命の濃度依存性

の遷移である⁵D₄→⁷F₅遷移の特性をまとめた⁽⁵⁾。また、図1にフッ化物ガラス中のTb³⁺イオンの発光寿命の濃度依存性を示すように、5 wt%まで寿命の低下は見られずTb³⁺のグリーンの発光は濃度消光の起き難い遷移といえる⁽⁶⁾。また、どのガラス中においても⁵D₄準位の理論的な蛍光寿命と測定値とはほぼ一致し、90%以上の量子効率を持ち、⁵D₄準位の非輻射緩和は殆ど起こらないことがわかった。増幅媒体の性能指標となるσ_{em}τ_{mes}値もフッ化物ガラスで2.8×10⁻²⁴cm²secであり、他の希土類イオン(Tm³⁺, Pr³⁺等)のレーザー遷移と遜色ない値を示していることがわかった。この事情は、他のガラスについても同様である。このように、⁵D₄→⁷F₅遷移自体は、レーザー発振遷

〒468-8511 名古屋市天白区久方 2-12-1

TEL 052-809-1860

FAX 052-809-1869

E-mail: ohishi@toyota-ti.ac.jp

表1 希土類添加ガラスの $\sigma_{em}\tau_{mes}$ 積の比較

Rare-earth doped glass	Emission wavelength (nm)	Radiative lifetime τ_{mes} (ms)	Emission cross section σ_{em} (10^{-21}cm^2)	$\sigma_{em}\tau_{mes}$ ($10^{-24}\text{cm}^2\text{s}$)
Er-doped silica glass	1532	11	5	30
Nd-doped fluoride glass	1300	0.45	8	3.6
Tb-doped fluoride glass	541	3.95	0.72	2.8
Tb-doped SBNACZ glass	542	2.61	0.81	2.1
Tm-doped fluoride glass	480	1.6	1.12	0.8
Pr-doped fluoride glass	1300	0.11	3.5	0.4

移として適した遷移といえる。

3. Tb³⁺添加光ファイバの光増幅およびレーザー発振特性

図2にTb³⁺イオンのエネルギー準位図を示す⁷⁾。光増幅やレーザー発振には、光増幅を起こす誘導放出遷移だけでなく、他の遷移が特性に大きく関与することがある。Tb³⁺の場合、光増幅特性を理解するには励起状態吸収を考慮する必要がある。これは、Tb³⁺の5d準位が比較的低エネルギーに位置していると考えられているためである。たとえば、488nmの光で⁵D₄準位を直接励起すると、⁵D₄準位から5d準位への励起状態吸収が起こる可能性がある。また、540nm帯の信号光やレーザー発振光による励起状態吸収も起こりえる。

5d準位は、フッ化物等のハライド物質中では、酸化物中より上位に位置していることが知られている。これを考慮しTb³⁺のホストとしてフッ化物ファイバ(ZrF₄-BaF₂-LaF₃-AlF₃-NaF (ZBLAN))を用いた。

光増幅実験は、Tb³⁺添加フッ化物ファイバ($\Delta n=0.54\%$, コア径=2.3 μm , カットオフ波長=0.47 μm , 損失=0.05 dB/m (波長0.54 μm), 長さ10m)をAr⁺レーザー(励起波長: 488nm)で励起し、He-Neレーザー(信号光

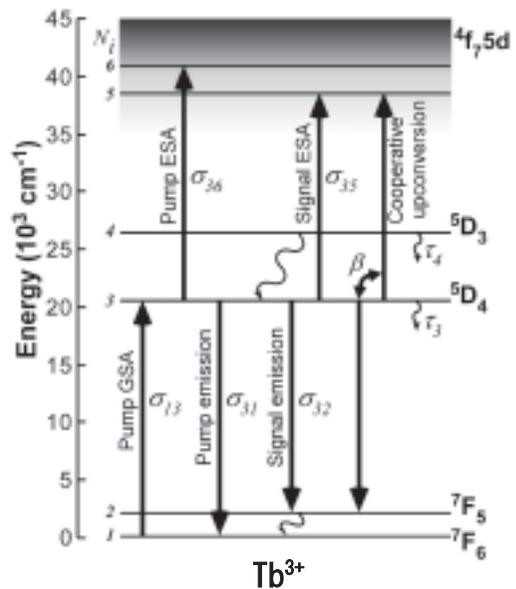


図2 Tb³⁺のエネルギー準位図と光学遷移

波長: 543.5 nm, 信号強度-30 dBm)からの光を信号光として行った。また、同ファイバの両端にファイバ・ブラック・グレーティング(反射率99%と19%, 反射波長542.8 nm)を接続してファイバレーザーを構成し、レーザー発振実験を行った。

図3に光増幅実験の結果を示す⁷⁾。信号光と励起光とを同一方向から入射した前方励起の場合、励起光量が115 mWのとき、5.2 dBの信

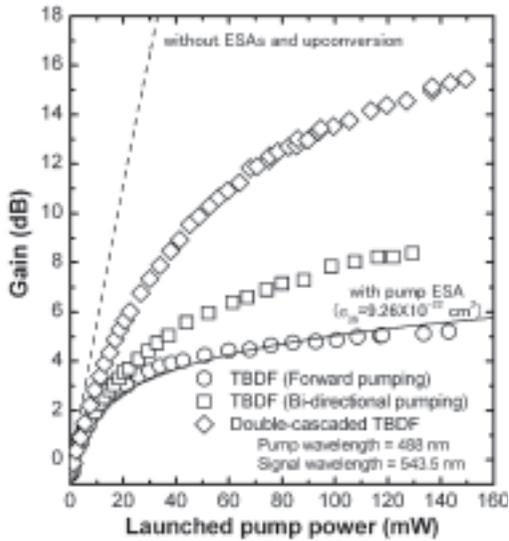


図3 Tb³⁺添加フッ化物ファイバの0.54 μmの利得の励起光強度依存性 (実線は計算値)

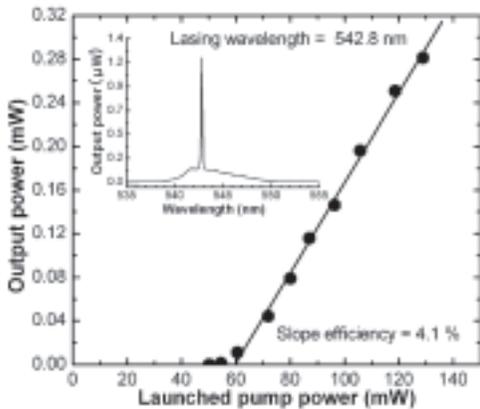


図4 Tb³⁺添加フッ化物ファイバのレーザー発振特性

号利得を確認でき、実際に Tb³⁺ の⁵D₄→⁷F₅ 遷移による利得が生じることをはじめて明らかにした。しかし、励起光量の増加に対して信号利得は飽和する傾向を示すこともわかった。前方励起の場合における Tb³⁺ 添加フッ化物ファイバの利得特性シミュレーションを、励起光および信号光の励起状態吸収および cooperative up-conversion (共同エネルギー移動) を考慮して

行った。結果は図3中の実線に示すように、励起準位である⁵D₄準位からの励起光の励起状態吸収を考慮した場合に、実験結果の利得飽和特性をよく再現する結果が得られた。このシミュレーションにより励起状態吸収の吸収断面積 σ_{36} は $9.26 \times 10^{-22} \text{ cm}^2$ であり、⁷F₆→⁵D₄ 遷移に対する吸収断面積 σ_{13} の $1.03 \times 10^{-22} \text{ cm}^2$ に対して約9倍もの大きさであることがわかった。また信号光の励起状態吸収や共同エネルギー移動による利得特性の劣化は問題にならないと考えられる。

励起光の励起状態吸収の遷移確率は励起光パワーの2乗に比例するため、前方励起よりも励起光パワー密度が低くなっている双方向励起と2段カスケード双方向励起の場合にはこの励起状態吸収が抑制されて、信号利得が増加すると考えられる。そこで、双方向励起および2段カスケード双方向励起実験を行った。図3でわかるように、光ファイバの両端から励起光を入射した双方向励起の場合には、励起光量が130 mWのとき8.3 dBの利得が得られ、前方励起の場合よりも信号利得が向上することがわかった。また、2段カスケード双方向励起の場合、最大で15.5 dBの利得が得られ、さらに信号利得が向上することがわかった。これらの結果から、488 nm 励起の場合、励起光の励起状態吸収が⁵D₄→⁷F₅ 遷移の利得を低下させる大きな要因となっていると結論できる。

図4に Tb³⁺ 添加フッ化物ファイバによるファイバレーザーの出力特性を示す^{(7), (8)}。Tb³⁺ イオンによる波長542.8 nmでの連続レーザー発振に初めて成功した。488 nm 励起で発振閾値が60 mW、スロープ効率は4.1%であった。レーザー出力特性は、ファイバ長等のパラメータの最適化や励起法の改善により、更なる向上が期待できると考えられる。

4. Tb³⁺-Yb³⁺間エネルギー移動を利用した励起法の検討

以上のように Tb³⁺ イオンによる0.54 μm 帯

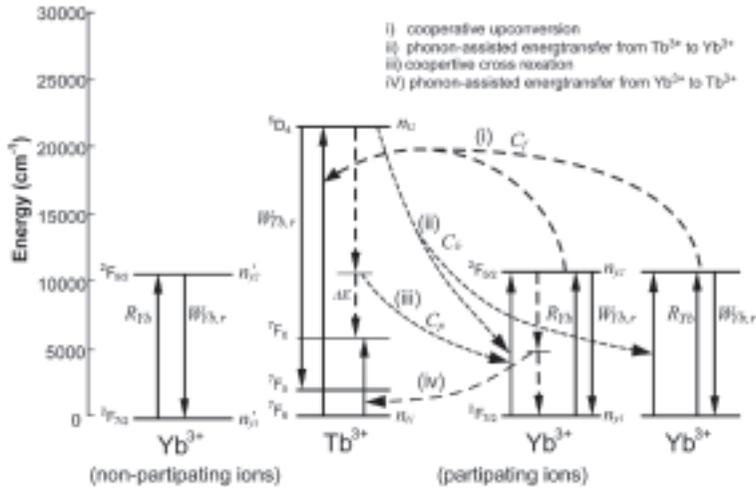


図5 Tb^{3+} - Yb^{3+} のエネルギー準位図とエネルギー移動

のレーザー発振に成功し、光増幅の基本機構を解明した。その結果、励起光の励起状態吸収が増幅特性を制限していることを明らかにし、励起効率の劣化回避法として励起法の検討が有効であることを示した。さらに、もし励起波長を変えて長くできれば、励起状態吸収を抑えることもでき、励起効率の向上が期待できる。488 nm による 3D_4 準位の直接励起ではなく、他の波長での励起の可能性を検討した。

一つの手法として Tb^{3+} と Yb^{3+} を共添加する手法が考えられる。図5に示した Yb^{3+} から Tb^{3+} への無輻射でおこるエネルギー移動が利用できれば、0.98 μm 帯 LD による励起が可能となる⁹⁾。特に、0.98 μm 帯 LD は光ファイバ増幅器の励起光源として高出力のものが開発されており、0.98 μm 帯励起は実用面からも重要な励起法といえる。 Tb^{3+} と Yb^{3+} が共添加されたガラスや結晶で、0.98 μm 帯の励起光源による Tb^{3+} の 3D_4 準位からグリーン発光が観測されている。しかし、この励起手法が光増幅やレーザー発振に用いられるかどうかは明らかにされていない。さらに、 Tb^{3+} 、 Yb^{3+} 間のエネルギー移動の機構が十分に解析されているかというところもなされていないのが現状である。そこで、 Tb^{3+} 、 Yb^{3+} 間のエネルギー移動の解

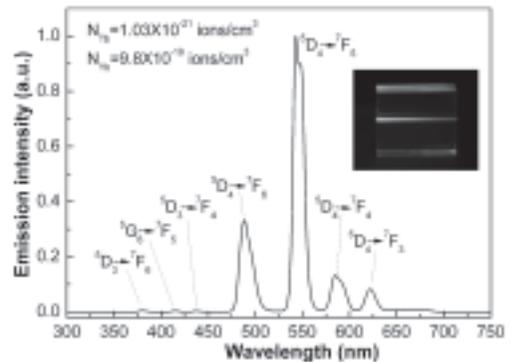


図6 Tb^{3+} - Yb^{3+} 共添加ガラス0.98 μm 帯励起によるアップコンバージョン

析をおこなった。

Tb^{3+} - Yb^{3+} のホストとして、 SiO_2 - B_2O_3 - Na_2O - Al_2O_3 - CaO - ZrO_2 系 (SBNACZ) ポロシリケートガラスを用いた。このガラスでは Tb^{3+} 、 Yb^{3+} の添加濃度範囲 0.5~30 wt% の Tb^{3+} 、 Yb^{3+} の添加が可能であることを見出し、 Tb^{3+} - Yb^{3+} 間エネルギー移動の解析に適していると考えられるので採用した。 Tb^{3+} - Yb^{3+} 間のエネルギー移動をレート方程式でモデル化した。

試料として、SBNACZ ポロシリケートガラスに Tb^{3+} と Yb^{3+} を共添加したガラスを熔融急冷法により作製した。図6に 974 nm 励起時の Tb^{3+} - Yb^{3+} 共添加ガラス (Tb^{3+} イオン濃度：

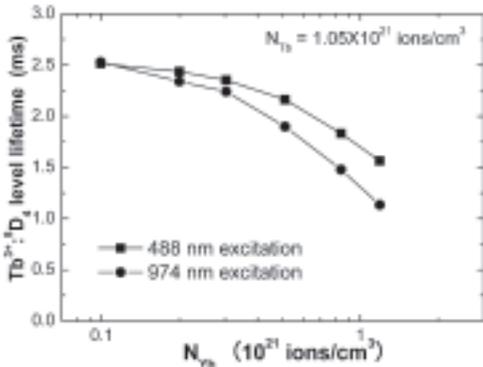


図7 Tb³⁺-Yb³⁺共添加ガラスにおける Tb³⁺の⁵D₄ 単位の寿命の Yb³⁺濃度依存性。励起波長は 488 nm および 974 nm。

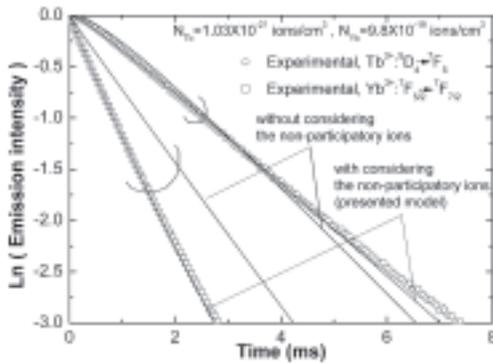


図8 Tb³⁺の⁵D₄→⁷F₆ 発光の減衰特性

1.07×10^{21} ions/cm³, Yb³⁺イオン濃度: 9.8×10^{19} ions/cm³ の蛍光スペクトルを示す。Tb³⁺の⁵D₄→⁷F₆ 遷移による緑色蛍光(ピーク波長 544 nm)が観測できた⁽⁹⁾。図7は Tb³⁺:⁵D₄ 単位の蛍光寿命に関する Yb³⁺添加濃度依存性を示す。Yb³⁺添加濃度の増加に伴い Tb³⁺:⁵D₄ 単位の蛍光寿命は短くなることがわかった。さらに、Tb³⁺:⁵D₄ 準位を直接励起する 488 nm 励起の蛍光寿命は、974 nm 励起の場合よりも長くなることがわかった。これらの結果は、試料には Yb³⁺へのエネルギー移動に関与しない Tb³⁺が存在することを示唆するものと考えられる。

図5に Tb³⁺-Yb³⁺のエネルギー準位図とともに、Tb³⁺-Yb³⁺間のエネルギー移動に関する遷

移を示す。ここでは、Tb³⁺-Yb³⁺間のエネルギー移動として、次の4つを考慮した⁽⁹⁾。

- i) 協同エネルギー移動 ($2 \text{ Yb}^{3+} : ^2\text{F}_{5/2} \rightarrow ^2\text{F}_{7/2}$; $\text{Tb}^{3+} : ^7\text{F}_6 \rightarrow ^5\text{D}_4$),
- ii) 項換交差エネルギー移動 ($\text{Tb}^{3+} : ^5\text{D}_4 \rightarrow ^7\text{F}_6$; $2 \text{ Yb}^{3+} : ^2\text{F}_{7/2} \rightarrow ^2\text{F}_{5/2}$),
- iii) フォノン放出を伴う Tb³⁺から Yb³⁺へのエネルギー移動 ($\text{Tb}^{3+} : ^5\text{D}_4 \rightarrow ^7\text{F}_0$; $\text{Yb}^{3+} : ^2\text{F}_{7/2} \rightarrow ^2\text{F}_{5/2}$),
- iv) フォノン放出を伴う Yb³⁺から Tb³⁺へのエネルギー移動 ($\text{Yb}^{3+} : ^2\text{F}_{5/2} \rightarrow ^2\text{F}_{7/2}$; $\text{Tb}^{3+} : ^7\text{F}_6 \rightarrow ^7\text{F}_0$)

iv) は、Yb³⁺:²F_{5/2} 準位の非輻射緩和の一要因として取り扱った。さらに、互いにエネルギー移動を起こさない Tb³⁺と Yb³⁺の存在も考慮した。これらを考慮すると Tb³⁺-Yb³⁺間のエネルギー移動を解析するためのレート方程式は(1)から(6)となる。

$$\frac{dn_{y2}}{dt} = R_{Yb}n_{y1} - (W_{Yb,r} + W_{Yb,nr})n_{y2} - 2C_n n_{y2}^2 n_{t1} + 2C_b n_{y1}^2 n_{t2} + C_p n_{t2} n_{y1}, \quad (1)$$

$$\frac{dn_{y1}}{dt} = -R_{Yb}n_{y1} - (W_{Yb,r} + W_{Yb,nr})n_{y2}, \quad (2)$$

$$\frac{dn_{e2}}{dt} = -W_{Tb,nr}n_{e2} + C_n n_{y2}^2 n_{t1} - C_b n_{y1}^2 n_{t2} - C_p n_{e2} n_{y1}, \quad (3)$$

$$\frac{dn_{t1}}{dt} = -C_n n_{y2}^2 n_{t1} + W_{Tb,nr}n_{e2}, \quad (4)$$

$$n_{y2} = f_{p,Yb} N_{Yb} - n_{y1}, \quad (5)$$

$$n_{t2} = f_{p,Tb} N_{Tb} - n_{t1}, \quad (6)$$

ここで、C_i, C_b, 及び C_p はそれぞれ、協同エネルギー移動、項換交差エネルギー移動及びフォノン放出を伴う Tb³⁺から Yb³⁺へのエネルギー移動に関するエネルギー移動係数を表す。また、R_{Yb} は Yb³⁺のポンプレート、W_{Yb,r} は Yb³⁺:²F_{5/2} の輻射緩和率、W_{Yb,nr} は Yb³⁺:²F_{5/2} の非輻射緩和率、W_{Tb,r} は Tb³⁺:⁵D₄ 単位の輻射緩和率を表す。n_{y1}, n_{y2}, n_{t1} 及び n_{t2} はそれぞれ、Yb³⁺:²F_{7/2} 準位、Yb³⁺:²F_{5/2} 準位、Tb³⁺:⁷F₆ 準位、及び Tb³⁺:⁵D₄ 単位のイオン数密度を表す。N_{Tb} と N_{Yb} はそれぞれ試料中の Yb³⁺と Tb³⁺のイオン数密度を示し、f_{Tb} と f_{Yb} はそれらのうちエネルギー移動に関与する

Yb³⁺とTb³⁺の割合を示している。エネルギー移動係数は、(1)から(6)式を励起条件下で解き、実験結果にフィッティングさせることで求めることができる。

図8に、実験により得たTb³⁺:⁵D₄→⁷F₅遷移とYb³⁺:²F_{5/2}→²F_{7/2}遷移の蛍光強度変化およびこれに対するフィッティング結果を示す⁽⁹⁾。エネルギー移動に関与するイオン数を考慮しない場合、フィッティング結果は実験結果と一致させることはできなかった。一方、 $f_{p,Tb}$ と $f_{p,Yb}$ をそれぞれ0.03, 0.2とした場合、実験結果をよく再現することができた。このことは、このガラス中でYb³⁺からエネルギー移動を受けるTb³⁺は添加したTb³⁺イオンの一部であることを強く示唆している。溶融法で作製できる粘性の低いガラス中であっても希土類イオンは必ずしも均一に分散しているわけではないことが示唆される。エネルギー移動係数 C_r , C_b 及び C_p はそれぞれ、 $9.16 \times 1034 \text{ cm}^6/\%$, $2.12 \times 1037 \text{ cm}^6/\%$ および $4.8 \times 1018 \text{ cm}^3/\%$ であった。これらエネルギー移動係数が求められたのは、このTb³⁺-Yb³⁺共添加系では初めてであり、これを用いて0.98 μm帯励起の可能性を検討した。

これらのパラメータを用いて、974 nm励起によるTb³⁺-Yb³⁺共添加ボロシリケートファイバの利得特性を数値計算により求めた。その結果、100 mW励起で20 dB以上の利得が得られることが分かった。つまり、Yb³⁺からTb³⁺の協同エネルギー移動による974 nm励起を用いて、Tb³⁺:⁵D₄→⁷F₅遷移による0.54 μm帯の利得は得られると考えられる。Tb³⁺からYb³⁺へのエネルギー移動効率を高めるためには、Tb³⁺とYb³⁺の添加濃度を高くすることが有効であると考えられる。

このようにTb³⁺-Yb³⁺共添加により0.98 μm帯励起も十分可能性であることも明らかにでき、0.54 μm帯の光増幅器のみならず高出力グリーンレーザー開発も可能であると考えられる。

5. まとめ

Tb³⁺の⁵D₄→⁷F₅遷移による0.54 μm帯の光増幅およびCWレーザー発振に世界で初めて成功した。⁵D₄準位励起を用いたTb³⁺の⁵D₄→⁷F₅遷移による光増幅およびCWレーザー発振を制限している要因は励起光の励起状態吸収であることを解明した。この励起状態吸収による特性劣化は、ホスト材料の選定、具体的にはTb³⁺が高い5d準位を取るホスト、励起光分布を空間的に均一励起に近づけることにより抑えられることを示した。また、Tb³⁺-Yb³⁺共添加により0.98 μm帯励起も十分可能性であることも明らかにした。

謝辞

本研究を中心となって推進した山下 達弥君の努力に感謝するとともに、研究遂行に関して貴重な助言をいただいた鈴木 健伸准教授、Guanshi Qin 博士研究員、荒井 雄介博士研究員に深謝する。

参考文献

- (1) S. I. Andreyev, et al., "The stimulated emission of Terbium-activated glass", *Sov. J. Opt. Tech.*, vol. 34, p. 819 (1967)
- (2) S. Bjorklund, et al., "Laser action from terbium trifluoroacetylacetonate in p-dioxane and acetonitrile at room temperature", *Appl. Phys. Lett.*, vol. 10, p. 160 (1967)
- (3) H. P. Jenssen, et al., "Stimulated emission at 5445 Å in Tb³⁺:YLF", in *Technical Digest of CLEO 1973 IEEE/OSA*, p. 555 (1973)
- (4) G. R. Atkins, et al., "Photodarkening in Tb³⁺-doped phosphosilicate and germenosilicate optical fibers", *Opt. Lett.*, vol. 19, p. 874 (1994)
- (5) T. Yamashita and Y. Ohishi, "Cooperative energy transfer between Tb³⁺ and Yb³⁺ ions co-doped in borosilicate glass," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 354, p. 1883 (2008).

- (6) T. Yamashita and Y. Ohishi, "Optical amplification at $0.54\ \mu\text{m}$ by Tb^{3+} -doped fluoride fiber," *Electron. Lett.*, vol. 43, p. 88 (2007).
- (7) T. Yamashita and Y. Ohishi, "Amplification and lasing characteristics of Tb^{3+} -doped fluoride fiber in the $0.54\ \mu\text{m}$ band", *Jpn. J. Appl. Phys. Express Lett.*, vol. 46, p. L 991 (2007)
- (8) T. Yamashita and Y. Ohishi, "A new green fiber laser using terbium-doped fluoride fiber," Technical Digest of OFC NFOEC 2008 (Optical Fiber Communication Conference and Exposition and The National Fiber Optic Engineers Conference), JWA 18 (2008).
- (9) T. Yamashita and Y. Ohishi, "Energy transfer and gain analysis for Tb^{3+} - Yb^{3+} -co-doped silicate glasses under the $0.98\ \mu\text{m}$ excitation," Technical Digest of CLEO/QELS 2008 (Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies), CFS 6 (2008).