Ti:Sapphireと張り合う多結晶カーレンズモードロッキング

セルゲイ・バシリエフ、ミハイル・ミロフ、バレンティン・ガポンスキィ

多結晶クロム添加硫化亜鉛とセレン化亜鉛のカーレンズモードロッキングは、マルチワット出力、3光周期に近づくパルス幅、3光波混合効果に行き着く。

1970年代に初めて発表された固体中赤外レーザ(mid-IR)は、カラーセンタ(色中心)を持つハロゲン化アルカリ結晶、あるいは、わずかな希土類イオンをドープされた酸化物結晶やフッ化物結晶をベースにしていた。そのようなレーザ光源は、利得媒体の極低温冷却を必要とした。それは非放射フォノンアシスト減衰による累積反転分布という失活を防ぐためである。遷移金属ドープII-VI(TM:II-VI)半導体は、1990年代遅くに米ローレンスリバモア国立研究所のウイリアム・クルプケのグループが発表したもので、実用的な室温中赤外発振への実行可能な道を示している。

クロム(Cr)ドープ硫酸亜鉛(ZnS)とセレン化亜鉛(ZnSe)は、TM:II-VI族の典型例であり、「中赤外のTi:Sapphire」(チタンサファイア)とよく言われる。これは、その四準位レーザ構造、励起状態吸収の欠如、広帯域可変(1.8～3.4μm)を可能にする広い振電発光帯、室温(RT)での蛍光の高い(100%に近い)量子効率のためである。

Ti:Sapphireと比較して、Cr:ZnS/ZnSeは、高い発光断面積(10～18cm^{2}オーダー)、高い二次非線形性および三次非線形性を特徴としている。好都合なことに、Cr:ZnS/ZnSeレーザは、無理のない価格の高信頼エルビウム(Er)やツリウム(Tm)ファイバレーザで励起できる。この有利なパラメータのブレンドは、多様で素晴らしいレーザ成果を生み出した。例えばマルチワット出力(18W利得スイッチ、30Wピュア CW)、高いレーザ発振効率(60%超)、1000nmを超える広帯域可変性、ジュールレベル長パルス出力エネルギー、狭線幅(100kHz以下)など。

複数の研究チームによる粘り強い努力によって、**図1**に示したように、モードロックCr:ZnS/ZnSeレーザは急速に進歩した。ピコ秒(ps)パルス幅のアクティブモードロッキングは2000年に実現、半導体可飽和吸収ミラー(SESAM)モードロッキングは2005年に実証された、カー(Kerr)レンズモードロッキングは2009年に達成された。モードロックCr:ZnS/ZnSeレーザの多くの重要な成果は、単結晶サンプルを使って得られたものであるが、この単結晶は成長が難しいので簡単には入手できない。

多結晶Cr:ZnS/ZnSe

多結晶Cr:ZnS/ZnSeレーザ媒体の重要な長所は、成長後の拡散ドープ技術である。これによって高いドーパント濃度、均一なドーパント分布、低損失を特徴とする大型レーザ利得媒体の量産が可能になる。その結果、CW、利得スイッチ、SESAMモードロック発振領域で、多結晶材料は徐々に、単結晶材料に置き換わった。多結晶Cr:ZnS/ZnSeカーレンズモードロッキングの最近の実証はレーザパラメータの大幅な改善を示し、超高速中赤外レーザの現実的なアプリケーションに道を開いた(図1)。

超高速中赤外Cr:ZnS/ZnSeレーザの共振器は、周知のTi:Sapphire発振器のものと同じである。共振器の分散管理はレーザパルス出力のパラメータを規定するため重要な設計検討事項となる。超高速Cr:ZnS/ZnSeレーザのほとんどの設計は、利得エレメントのブルースタ・マウンティングに依存している(Ti:Sapphireレーザ技術のデファクトスタンダード)。最近の実験では、慣例に従わない利得エレメントの垂直入射マウンティングの優位性が明らかになっている。多結晶Cr:ZnS/ZnSeの垂直入射マウンティングは、これまでに得られた最高出力、最小パルス幅の中赤外発振器を実現した(図1の矢印)。

Cr:ZnS/ZnSeの高非線形性によって、フェムト秒光パルスの非線形周波数変換で数々の興味深い状況が得られる。多結晶Cr:ZnS/ZnSeは、多数の微細単結晶粒で構成されている。成長後のドーピング技術によって、微細構造の操作ができ、結晶粒の平均サイズを、例えば二次高調波発生(SHG)のためのコヒレンス長に整合させることができる。

結晶粒のサイズと方向の広い分布から、いわゆるランダム疑似位相整合が得られる。その特徴は、変換収率と厚さとの線形従属、超広帯域幅である。この光共振器は、超高速多結晶レーザ

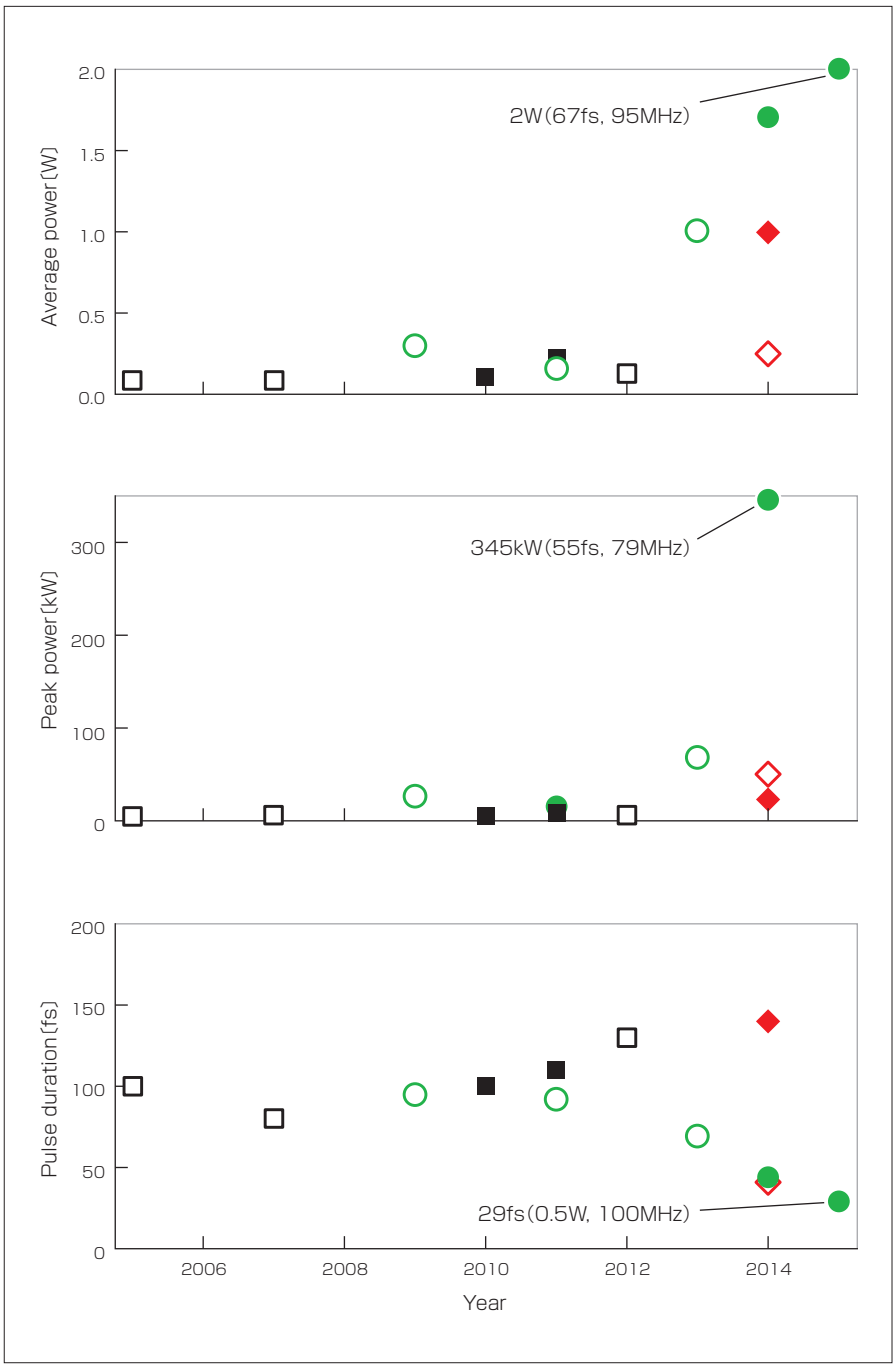

図1　多様なモードロッキング法をベースにした超高速中赤外Cr:ZnS/ZnSe発振器の進歩を比較：SESAM（□）、グラフェン（◇）、カーレンズ（○）、それに利得媒体タイプ毎：単結晶（中空の記号）と多結晶（中空でない記号）。矢印は、これまでに得られた記録的なパラメータ（発行済みの参考文献1、2の日付をベースにしている、最新の成果はIPGフォトニクスで得られたもの）。

の利得エレメントで最大のSHG変換が得られるように直接的に最適化することができる。1.2μmで今日までに得られたSHG最高パワーは0.25W、0.5Wは近い将来に実現する見込みである。

多数の3光波混合効果

多結晶Cr:ZnS/ZnSeの非線形超ワイドバンドは、多くの3光波混合効果を生み出す、**図2**と**3**に示したように、例えば第三高調波発生、第四高調波発生、

NKT Photonics
the power of light

高出力
スーパーコンティニューム光源

SuperK EXTREME

広波長帯域400～2400nm
高輝度シングルモードビーム

>>> 350～850nm波長域で最大出力2000mW
最大周波数78MHzまたは40MHz
多彩なアクセサリー群
>>> 光干渉断層撮影（OCT）・
蛍光寿命イメージング（FLIM）・
蛍光共鳴エネルギー移動（FRET）などに最適

小型エントリーモデル
SuperK COMPACT
好評発売中！

高出力・超低ノイズ
単一周波数レーザー光源

Koheras BOOSTIK

>>> 原子冷却・量子コンピュータ・干渉センシング・
歪み検出・ドップラーLIDARなどに最適

低出力タイプ　Koheras AdjustiK,
マルチチャンネル　Koheras ACOUSTIK,
OEMタイプなど、充実のラインナップ

http://www.japanlaser.jp/
E-mail: lase@japanlaser.jp

JLC JAPAN LASER 株式会社日本レーザー
本　社　〒169-0051 東京都新宿区西早稲田2-14-1
TEL: 03-5285-0863（直）
大阪支店　TEL: 06-6323-7286
名古屋支店　TEL: 052-205-9711

中赤外フェムト秒パルスとCW励起ビームとの和周波混合。テラヘルツ生成の効果（フェムト秒レーザパルスの光学検波による）、差周波混合（フェムト秒パルスと励起レーザ放出との間）が、正確な検出によっていずれ明らかになる。

さらに、容易に入手できる1.5μmピコ秒およびフェムト秒Erファイバレーザを用いた多結晶Cr:ZnS/ZnSeの同期励起は、和周波混合と差周波混合の収率を根本的に数桁程度増やし、範囲1～4μmをカバーする非常にブロードなスペクトルによって超高速発振器が実現する可能性がある。ランダム疑似位相整合利得媒体を利用する超高速レーザの研究をさらに推し進めることは、素晴らしい研究課題であり重要な実際的な成果につながりそうだ。

超高速中赤外Cr:ZnS/ZnSeレーザ開発の最近の10年は、出来事と発見でいっぱいだった。SESAMモードロックベースのフェムト秒レーザは徐々に、一段とロバストなカーレンズモードロック発振器に取って代わられた。最近の多結晶カーレンズモードロックレーザで、ミリワット出力、パルス幅が3オプティカルサイクルに近いものが、最先端のTi:Sapphire発振器と一致する超高速中赤外レーザ技術をもたらした。TM:II-VI材料が超高速発振の固有の可能性を提供し、同じ利得媒質を用いることで非常に広範囲のパラメータ（出力、パルス幅、パルス繰り返しレート）が実現可能であることが実証された。

過去数年の急速な進歩は、近い将来により一層素晴らしい成果を約束するものである。現在の研究活動には、超高速Cr:ZnS/ZnSeレーザの出力を5Wレベルまで、それ以上に拡大すること、オクターブ域の中赤外発振器の開発、超高速レーザ発振器を4～8μmレンジに拡張することが含まれる。

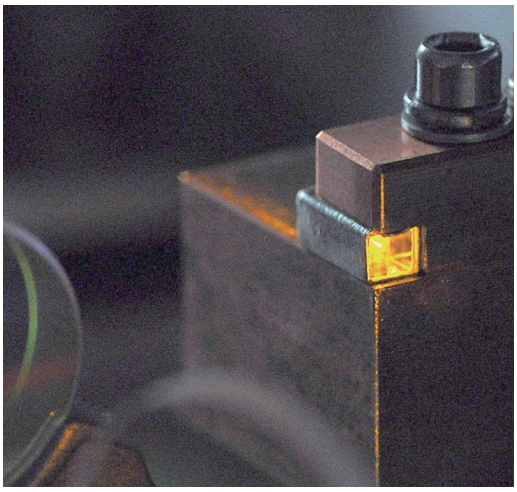

図2　モードロック中赤外レーザの利得エレメントから、有名なローダミン（Rhodamine）6G（R6G）黄色を発生。可視発光は、2.4μmフェムト秒放射の四次高調波を用いたランダム疑似位相整合多結晶Cr:ZnSから生成（IPGフォトニクス社提供）。

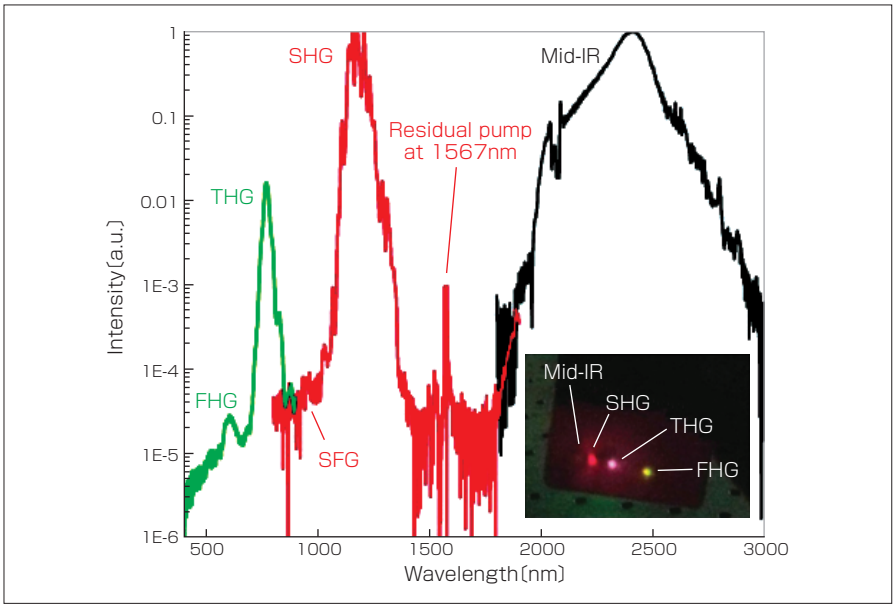

図3　カーレンズモードロック多結晶Cr:ZnSレーザの発光スペクトルを示している。基本中赤外、SHG、THG、FHG光高調波のスペクトル成分を含む。950nmの弱いピークは、中赤外パルスとCW励起放射との和周波生成（SFG）。多結晶Cr:ZnSの超広帯域非線形は、21THz域（半値全幅）のSHGスペクトルになり、これは8.6THzスペクトル幅、38fs中赤外パルスから生成。挿入図はレーザ出力のスペクトル成分で、プリズムで分解し、IRに感度があるカードで検出したもの（IPGフォトニクス社提供）。

参考文献

(1) S. B. Mirov et al., IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron., 21, 1601719 (2015).
(2) I. T. Sorokina and E. Sorokin, IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron., 21, 1601519 (2015).
(3) S. Vasilyev, M. Mirov, and V. Gapontsev, "High power Kerr-lens mode-locked femtosecond mid-IR laser with efficient second harmonic generation in polycrystalline Cr2+:ZnS and Cr2+:ZnSe," Advanced Solid-State Lasers (ASSL) Conference, OSA Technical Digest, paper Am3A.3 (2014).

著者紹介

セルゲイ・ワシリエフは、IPGフォトニクス社、中赤外レーザのスペシャリスト。
e-mail: vasilyev@ipgphotonics.com
ミハイル・ミロフはIPGフォトニクス社、中赤外レーザ担当ジェネラルマネージャー。
バレンティン・ガポンツェフはIPGフォトニクス社（www.ipgphotonics.com.）の創始者/CEO（Oxford, MA）。

LFWJ