

Sr 光格子時計用
813 nmTm³⁺添加 ZBLAN ファイバ MOPA

梶川 詠司

電気通信大学大学院情報理工学研究科
博士（工学）の学位申請論文

2020 年 3 月

Sr 光格子時計用
813 nmTm³⁺添加 ZBLAN ファイバ MOPA

博士論文審査委員会

主査 武者 満 准教授

委員 白川 晃 准教授

委員 桂川 眞幸 教授

委員 米田 仁紀 教授

委員 渡辺 昌良 教授

著作権所有者

梶川詠司

2020

813-nm Tm^{3+} -doped ZBLAN fiber MOPA for Sr optical lattice clock

Eiji Kajikawa

Abstract

One of the most accurate optical clocks, Sr optical lattice clock, is expected to be the next frequency standards and is used for a variety of applications. In order to improve the transportability of Sr optical lattice clock, it is needed to change the lattice laser from Ti:Sapphire laser to fiber-based laser source because the Ti:Sapphire laser has disadvantages of its larger size and lack of long-term operation.

The requirements of the lattice laser are the wavelength of 813 nm, the output power of more than 1 W with continuous wave and the linewidth of narrower than 1 MHz. Among rare-earth ions, only Tm^{3+} shows the emission at 810 nm region, however the emission lifetime of Tm^{3+} -doped silica fiber is too short to amplify the 810 nm region due to its high phonon energy. Therefore, we have developed an Yb^{3+} : fiber laser pumped Tm^{3+} -doped ZBLAN fiber MOPA system because Tm^{3+} -doped ZBLAN fiber has the long lifetime due to its low phonon energy.

Though the output power more than 1 W was achieved in our previous experiment, the output power was unstable due to the photodarkening. Therefore, in order to suppress the photodarkening, we tried to improve the efficiency and suppress the photodarkening by dual-wavelength pumping and real-time photobleaching. As a result, the maximum output power of 1.95 W with the slope efficiency of 48% was achieved. And also, since the 813 nm showed the photobleaching effect, we have developed cascaded MOPA system with pre-amplifier to improve the SN ratio and suppress the photodarkening. Furthermore, the photodarkening and the photobleaching effect of Tm^{3+} -doped ZBLAN fiber were investigated for realizing stable operation. Consequently, the SN ratio of more than 50 dB and high-power operation has been obtained by our cascaded MOPA system,

which would be improve the performance of transportable Sr optical lattice clock.

Sr 光格子時計用

813 nm Tm³⁺ 添加 ZBLAN ファイバ MOPA

梶川詠司

概要

ファイバレーザー光源は高強度で安定動作可能なレーザーシステムとして広く普及している。Sr 光格子時計の光格子用レーザーには現在チタンサファイアレーザーが用いられているが長期安定動作が難しいという欠点がある。ファイバレーザー光源はその問題を克服できる可能性をもつため次世代の Sr 光格子時計の光格子用レーザー (lattice laser) として使用されることが期待されている。波長 813.42 nm で高出力 (1 W 以上) かつ狭線幅 (1 MHz 以下) な単一周波数のレーザーが光格子用レーザーに求められる。ファイバを用いて光格子用レーザーを開発するには 810 nm 帯に唯一蛍光を持つ Tm³⁺ 添加ファイバを使用することが考えられる。しかし一般的な Tm³⁺ 添加シリカファイバはフォノンエネルギーが高いため上準位寿命が短く 810 nm 帯を効率よく増幅することが難しい。ZBLAN ファイバはフォノンエネルギーの小さいファイバとして知られており Tm³⁺ 添加 ZBLAN ファイバは増幅に十分な上準位寿命を持つためファイバベースの光格子用レーザー開発に適すると考えられ、我々の研究室では以前から Tm³⁺ 添加 ZBLAN ファイバを用いた MOPA システムによって光格子用レーザーの開発を行ってきた。MOPA とはマスターレーザーの周波数安定度を維持したままレーザー光増幅器によって高出力化ができるシステムであり安定で高出力なレーザー光源として知られている。813 nm で増幅するためには 1 μm 帯と 785 nm の 2 通りの励起波長が考えられる。しかし Tm³⁺ は 813 nm で強い再吸収を持つためクラッド励起では励起強度が低く 1 W 以上の増幅が難しいため 785 nm 励起は高出力な増幅パワーが得られにくい。一方で 1 μm 帯の波長では、よく知られた高強度で安定な光源である Yb³⁺: ファイバレーザーが励起レーザーとして使用できる。そこで我々の研究室では Yb³⁺: ファイバレーザーを励起光

源として用いたアップコンバージョン励起による MOPA システムによって光格子用レーザーの要求値を満たす光源開発を行ってきた。

先行研究において、マスターレーザーとして用いた ECLD の光を Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバによって増幅する MOPA システムによって 1 W 以上の出力が達成され光格子用レーザーの要求値を満たしたが長期安定動作は実現できなかった。そこで本研究ではその問題点を克服し、長期動作可能な高出力 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバ MOPA システムの開発を行った。

まず、先行研究で問題となった出力の不安定性の原因について調べるとフォトダークニングが原因であることがわかった。そのため、 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバのフォトダークニング抑制や高効率化などに着目し高出力安定動作を目指すと同時にフォトダークニングのメカニズムについて調べた。フォトダークニングを抑制や高効率化を考え 532 nm のレーザーによるフォトブリーチング、そして 2 波長励起を試した。その結果、1.95 W の増幅出力を 48% の高いスロープ効率で出力することができた。この増幅パワーは 810 nm 帯のファイバ光源において世界最高の出力であり、増幅パワーは励起レーザーのパワーで制限された。さらに増幅パワーの飽和がみられなかったため、より強い励起パワーによって更なる増幅出力が可能であることがわかった。信号光の 813 nm でフォトブリーチングされることがわかったので、フォトブリーチングの抑制と SN 比向上のためプリアンプを新たに開発しカスケード MOPA システムを構成した。その結果、50 dB 以上の高い SN 比と 1 W 以上の長時間動作を実現した。さらにフォトダークニングやフォトブリーチングについて調べ信号光のパワーを大きくすることでフォトダークニングを効果的に抑制できることがわかった。

本研究によって、これまでに無い新しい光格子用レーザーとして、813 nm 帯高出力ファイバ増幅器の開発が行われた。ハイパワーファイバ光源において問題となるフォトダークニングの抑制やフォトブリーチングに対して新しい知見が得られ、様々な波長のレーザー光源開発への応用が期待される。

目次

1. 序論	1
1.1. 背景	1
1.2. 希土類添加 ZBLAN ファイバレーザー	4
1.3. 本論文の目的と構成	5
2. 原理	8
2.1. フッ化物光ファイバ	8
2.1.1. 機械的特性	9
2.1.2. 光学的特性	10
2.1.3. 伝搬モード	12
2.2. ツリウム (Thulium) イオン	13
2.2.1. エネルギー準位とエネルギー移動	15
2.3. Tm ³⁺ 添加 ZBLAN ファイバ	19
2.4. ファイバ増幅器の動作原理	21
2.5. 外部共振器型半導体レーザー(ECLD : External Cavity Laser Diode)	23
2.6. 利得飽和	25
2.7. フォトダークニングとフォトブリーチング	26
2.7.1. Yb ³⁺ 添加ファイバのフォトダークニング	27
2.7.1.1. 電荷移動遷移によるフォトダークニング	28
2.7.1.2. 酸素欠乏欠陥によるフォトダークニング	30
2.7.1.3. Tm (不純物) によるフォトダークニング	33
2.7.2. Yb ³⁺ 添加ファイバのフォトダークニング抑制	35
2.7.2.1. Yb ³⁺ 添加ファイバのフォトブリーチング	35
2.7.2.2. Yb ³⁺ 添加ファイバのサーマルブリーチング	37
2.7.3. Tm ³⁺ 添加ファイバのフォトダークニング	39
2.7.4. Tm ³⁺ 添加ファイバのフォトダークニング抑制	41
3. Tm³⁺:ZBLAN ファイバを用いた光格子用レーザーの開発	43

3.1.	基本的な実験構成	44
3.1.1.	外部共振器型半導体レーザー (ECLD)	45
3.2.	フォトダークニングとフォトブリーチング	47
3.2.1.	増幅出力 (813 nm) の時間変化.....	47
3.2.2.	吸収スペクトル変化.....	49
3.3.	Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバ増幅器の増幅出力のシミュレーション	51
3.3.1.	低添加濃度ファイバを用いた 2 波長励起のシミュレーション	51
3.3.2.	高添加濃度ファイバを用いた 1 波長励起のシミュレーション	54
3.4.	フォトブリーチングを用いたファイバ MOPA の高出力化	57
3.4.1.	低添加濃度ファイバ MOPA (2 波長励起)	58
3.4.1.1.	増幅出力特性	61
3.4.1.2.	2 波長励起パワー比による変換効率の違い.....	63
3.4.1.3.	増幅光スペクトル	64
3.4.1.4.	低添加濃度ファイバ MOPA (2 波長励起) のまとめ	65
3.4.2.	高添加濃度ファイバ MOPA (1 波長励起)	65
3.4.2.1.	増幅出力特性	67
3.4.2.2.	増幅光スペクトル	68
3.4.2.3.	高添加濃度ファイバ MOPA (1 波長励起) のまとめ	69
3.5.	SNR の向上と長期動作に向けたカスケードアンプの開発	70
3.5.1.	プリアンプの開発.....	71
3.5.1.1.	Tm ³⁺ 添加 ZBLAN ファイバ長に対する増幅特性の違い.....	71
3.5.1.2.	プリアンプの構成	73
3.5.1.3.	プリアンプの利得波長帯域と増幅スペクトル.....	74
3.5.1.4.	813 nm におけるプリアンプの増幅パワーと増幅スペクトル.....	75
3.5.2.	カスケードファイバアンプ.....	76
3.5.2.1.	カスケードファイバアンプの出力特性.....	76
3.5.2.2.	カスケードファイバアンプの増幅出力スペクトル.....	78
3.5.2.3.	カスケードファイバアンプの出力動作.....	80
3.5.3.	カスケードファイバアンプのまとめ.....	81
3.6.	813 nm によるフォトダークニングの抑制	83
3.6.1.	813 nm でのフォトブリーチング効果.....	83
3.6.2.	カスケードファイバアンプ増幅動作時に生じるフォトダークニング効果	84
3.6.3.	信号光パワーに対するダークニングによる損失の時間変化.....	87
3.6.4.	813 nm によるフォトダークニング抑制効果のまとめ	96

4. まとめと展望.....	98
4.1. まとめ.....	98
4.2. 展望.....	101

1. 序論

1.1. 背景

時間の精度は物理定数の中で最も高く、時間の精度向上はそれまで観測不可能だった時間領域の物理現象を観測可能にしてくれる。時間の精度向上は多くの科学者の関心の的であり、それは近年のノーベル物理学賞の受賞内容をみてもよくわかる。Ramsey、Paul、Dehmelt が 1989 年に受賞した内容はラムゼー共鳴法とイオントラップ法、1997 年の Chu、Cohen-Tannaoudji、Phillips らが受賞した内容はレーザー冷却と磁気光学トラップ、2005 年の Hall と Hänsch が受賞した光周波数コムやレーザーを用いた精密分光技術は現代の光周波数原子時計に繋がっている。そもそも高いコヒーレンス長を持つ光周波数領域の発振器であるレーザーの開発自体が、高い周波数安定度の実現にとって最も大きなブレークスルーであると考えられるが、そういった事を言い始めると枚挙に遑がない。以上から、時間精度の向上は科学技術のブレークスルーが必要であり科学技術の発展に大きく貢献しているといえよう。現在最も精度の高い時計は、レーザー冷却しトラップされた原子の吸収線（吸収波長）を基準として周波数が安定化されたレーザー光の周波数によって与えられ、光原子時計（optical atomic clock）と呼ばれる。原子時計の精度は年々向上しており近年では $\Delta f/f \sim 10^{-18}$ の不確かさが実現されている。Sr 光格子時計は光時計の中でも高い精度を達成し次世代の周波数標準として期待されている。（図 1.1[1]）。近年では Sr 光格子時計は実験室内にとどまらずトレーラーに乗せられて可搬化が実現され、実験室外でも 10^{-17} の不確かさが実現されている[2]。将来的には衛星搭載可能な光時計開発が期待されており、そのためには更なる小型化や堅牢化が必須である。それらを実現するためにはレーザー光源の小型化など性能の向上が必要不可欠となる。Sr 光格子時計は Sr 原子冷却用レーザー(cooling laser)、Sr 原子分光用レーザー(clock laser)、そして Sr 原子を光トラップするためのレーザー（光格子用レーザー : lattice laser）が使用される。それらのレーザーは高い周波数精度が必要とされるが、中でも光格子用レーザーは多数の原子をトラップする目的のために大きなレーザー出力も要求される。具体的な光格子用レーザーの要求値は以下のようになっている。波長については、時計遷移の上下準位に生じるシュタルクシフトが相殺される波長（マジック波長と呼ばれる）813.42 nm が使用される。他の要求値は周波数線幅 1 MHz 以下、出力 1 W 以上、単一周波数、低ノイズであ

る。従来は 813 nm の光源の中で最も光学的に優れているチタンサファイアレーザーが世界中の Sr 光格子時計に使用されている。しかし Sr 光格子時計に使われる光源の中ではチタンサファイアレーザーが最もサイズが大きく、Sr 光格子時計の小型化を制限している。小型な 813 nm 光源である半導体増幅器 (TA : tapered amplifier) を用いた MOPA(master oscillator power amplifier)システムも光格子用レーザーとして使用できるが、ASE (amplified spontaneous emission) がマジック波長の決定精度を悪化させてしまい不確かさの劣化を招く[2]。そこで、高出力且つ低消費電力、そして低ノイズで長時間動作可能な小型の光格子用レーザーの必要性が Sr 光格子時計の可搬化に伴い大きくなっている。

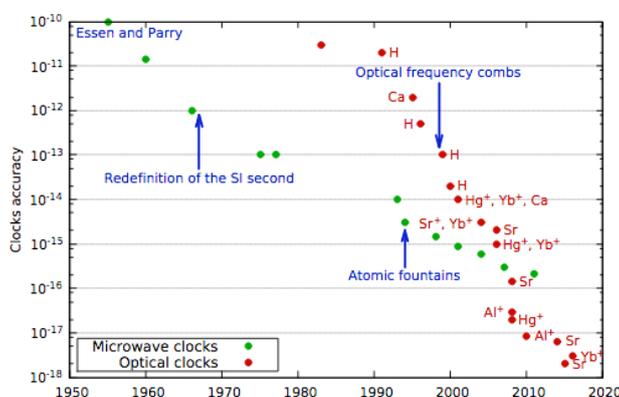


図 1.1 原子時計の周波数精度[1]

当研究室では以前よりファイバを用いた新しい光格子用レーザーの開発を行なってきた。ファイバベースの光格子用レーザーの開発には、希土類元素の中で唯一 810 nm 帯に蛍光を持つ Tm^{3+} が添加されたファイバを使用する事が考えられる。しかし、一般的な Tm^{3+} 添加シリカファイバはフォノンエネルギーが高く上準位寿命が短いため自然放出緩和率が大きいの。従って、反転分布の形成に必要な励起強度が大変大きくなり効率が低くなってしまふ。できるだけ低い励起パワーで増幅に十分な反転分布を形成するためにはフォノンエネルギーの低いファイバを使用する事が考えられる。フッ化物ファイバはフォノンエネルギーの低いファイバとして知られている。フッ化物ファイバの中でも ZBLAN (ZrF₄-BaF₂-LaF₃-AlF₃-NaF) ファイバは化学的に安定したファイバとして知られており、ZBLAN ファイバを製造販売する企業から購入が可能である。

Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いた MOPA によって光格子用レーザーの要求値を満たす光源の開発がこれまでに本研究室で行われてきた。MOPA システムは低パワーのマスターレーザーの光を光増幅器によって高出力化する手法であり、マスターレーザーの高い周波数安定度を維持したまま光増幅器によって出

力が増幅される。そのため MOPA は安定で高出力なレーザーシステムの開発に適した手法として知られている[3], [4]。光増幅部にファイバ増幅器を用い MOPA は堅牢で長期動作に優れたシステムである。ECLD は周波数線幅が狭く安定かつ小型なレーザーとして知られており、精密分光や MOPA のマスターレーザー用いられる[5]-[7]。マスターレーザーに ECLD、光増幅部に Yb^{3+} :ファイバレーザーでコア励起された Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いる事で 1 W 以上の増幅出力と 1MHz 以下の周波数線幅が得られる事がこれまでにわかっている (図 1.2、図 1.3)。周波数線幅については自己遅延ヘテロダイン法で測定されており、200 kHz の分解能で測定された。これらの結果から光格子用レーザーの要求値を満たす事がわかったが安定に動作する事が難しく光格子用レーザーとして使用できないという大きな問題があった。本研究ではこの問題を解決し小型・堅牢な Sr 光格子時計に適した光格子用レーザーの開発を目指し、他の光格子用レーザーと比較して本研究で開発した光格子用レーザーの有用性について示した。

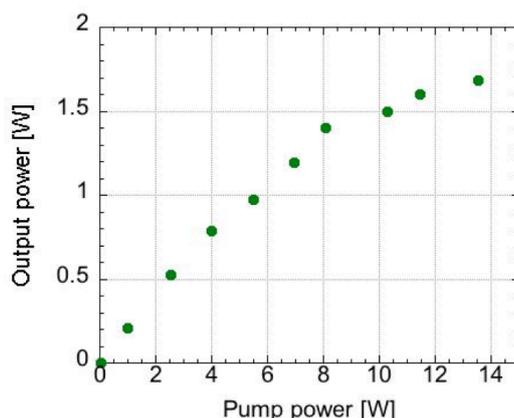


図 1.2 過去の実験結果 (増幅出力)

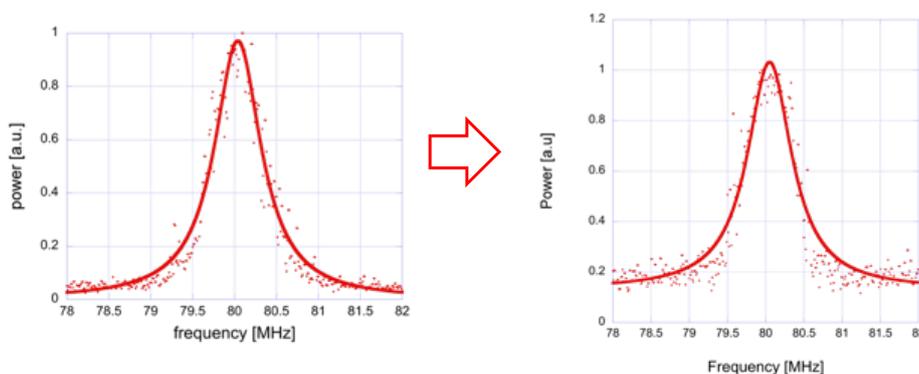


図 1.3 周波数線幅 (左: マスターレーザー、右: 増幅後)

1.2. 希土類添加 ZBLAN ファイバレーザー

希土類添加 ZBLAN ファイバを用いたレーザー光源は多く報告されている。ZBLAN ファイバはフォノンエネルギーの低いため希土類添加の場合に中赤外波長においても高い輻射遷移確率を持ち、さらにその波長帯において高い透過率を持つため中赤外の波長帯ではシリカファイバの場合よりも高い出力が実現されている。しかし、ZBLAN ファイバは空気中の水分と反応しやすく融点が高いため壊れやすいという問題がある。そのため実用的で高出力な光源開発は難しいとされてきた。ところが近年中赤外波長帯域の光利用の需要が高まり、中赤外波長のレーザーにも注目が集まり始めた。そして中赤外の ZBLAN ファイバレーザーの研究開発も活気がうまれ、実用的な ZBLAN ファイバレーザーの実現に向けた要素技術開発が行われた。そのうちの 1 つが、超短パルスレーザーを用いた利得ファイバへの FBG(fiber bragg grating)直接書き込み技術である[8]–[10]。一般的なファイバレーザーの構成は利得ファイバの両端に FBG が書き込まれたノンドープファイバを融着する構成である。しかし、ファイバレーザーが高出力になるとその融着点が焼けてしまう問題が生じてしまう。そこで利得ファイバに直接 FBG を書き込むことができれば融着点が無くなるため、より高出力なファイバレーザーが可能になる。ZBLAN ファイバは融点が高いため低損失な融着が難しくこの技術が大変有効である。融着が難しい ZBLAN ファイバであるが、ZBLAN ファイバとシリカファイバの程損失な融着も実証されており[11], [12]、今後 ZBLAN ファイバとシリカファイバの融着を用いたファイバレーザーの普及が期待される。空気中の水分と反応しやすい ZBLAN ファイバはエンドキャップを施すことで長期動作可能であると報告されている[13]。日本国内では、大阪大学レーザー研のグループでフッ化物ファイバのクラッド励起用コンバイナの開発に成功している。これはフッ化物ファイバの端面を大きな角度をつけて研磨し、研磨したフッ化物ファイバを他のフッ化物ファイバの側面に熱で加熱しながら押し当てて直接接合する技術である[14]。このように長期動作やハイパワー化に必要な要素技術が中赤外の ZBLAN ファイバレーザーに応用されている。

こうした新しいコンポーネントの開発や破壊閾値向上のための技術開発によって、ZBLAN ファイバを用いた光源の高出力化が進んでいる。特に、中赤外波長帯域で研究開発が近年盛んに行われており、例えばカナダの Laval 大学のグループによって Er^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いた 2.8 μm 帯のファイバレーザーで 42 W(2824 nm)の CW (continuous-wave)出力が達成されている[15]。さらにエンドキャップを最適化することで 100 時間以上の長期動作(出力 20 W、波長 2.8 μm)も実証された[13]。同グループでは超短パルスレーザー利得ファイバに直接

FGB が書き込まれた Er^{3+} 添加 ZrF_4 ファイバを用いて 5.6 W の出力 (波長:3.55 μm) も達成されている[16]。中赤外波長は樹脂の加工やセンシングなどの応用があり、 Er^{3+} 以外にも Ho^{3+} や Dy^{3+} が添加された ZBLAN ファイバによって様々な中赤外波長帯域のファイバレーザー開発が行われている[17]-[20]。今後、中赤外ファイバレーザーのハイパワー化が進み、更にはそれらを励起光源とした新しいレーザーの開発やアプリケーションの広がりを見せていくと思われる。中赤外だけでなく可視域でのレーザー開発も盛んに行われている。近年ではシリカファイバと ZBLAN ファイバを融着したオールファイバタイプの青色のファイバ増幅器が開発されたり[21]、同じくオールファイバの 785 nm のレーザーも実証されている[22]。このように、融着や加工技術の進歩により堅牢で安定動作可能なフッ化物ファイバレーザーの開発が進んでいる。しかし、高出力化や長期動作にはフォトダークニングやファイバの劣化が問題となる。フォトダークニングのメカニズムに関しては未だ明快な答えは出ておらず今後の研究に期待されている。

810 nm 帯においても Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いた光源がいくつか報告されている[23]-[25]。1064 nm 励起を行なった例では 1.2 W の出力が達成されており[23]、778 nm 励起では 85% のスロープ効率が報告されている[25]。しかし、これらは狭線幅で単一周波数の光源では無いため光格子用レーザーとして使用できない。これに対して、我々の研究室で初めてファイバ増幅器として使用する事で単一周波数で狭線幅な光源が実証された[26]。しかし光格子用レーザーとして使用するためには長期動作や ASE に問題があり、これらの問題解決によって長期動作可能で低ノイズ且つ高出力な光格子用レーザーの実現が期待された。

1.3. 本論文の目的と構成

本論文は Sr 光格子時計の更なる小型・堅牢化に向けた新しい光格子用レーザーの開発を目指し、長期安定動作可能、低ノイズ、低消費電力そして高出力な 813 nm 光源の開発を行なった。

これまで、 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いた高出力なファイバ増幅器は安定動作ができない問題があった。この問題に対してフォトダークニングが主な原因であることを明らかにし、フォトダークニングの抑制に注目する事で高出力安定動作可能な 813 nm ファイバ MOPA システムの開発研究を行った。その

開発研究で示されたフォトダークニングの抑制手法や低ノイズ化、そして高出力化を実現したメカニズムについて明らかにされた事を記している。

本論文の構成について記す。

第1章では Sr 光格子時計の小型化や光格子用レーザーの現状と問題点、そして本研究に関係した主な実験結果について記述している。長期安定動作可能な ZBLAN ファイバ光源の開発は本研究の目的の1つであり、ZBLAN ファイバを用いた高出力光源の実用化に向けた研究の現状について述べている。

第2章では ZBLAN ファイバの特徴について、その機械的特性や光学的特性について説明している。そして Tm^{3+} が持つ 810 nm 以外の遷移波長や 810 nm 帯の遷移を用いたファイバレーザー光源についてこれまで報告されている結果をまとめている。また、フォトダークニングやその抑制手法について報告されている結果とそのモデルについて説明している。

第3章では本研究で行なった Sr 光格子時計のための光格子用レーザー開発についての実験結果を記しており、はじめに使用したマスターレーザーの性能などについて記している。その次に、本研究で用いる Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバのフォトダークニングと 532 nm によるフォトブリーチングの実験結果について示しており、フォトダークニングによって 813 nm に損失ができてしまう事や 532 nm のフォトブリーチングが有効である事を実験結果と共に示している。3.4 節では、シミュレーションソフト matlab を用いた増幅出力のシミュレーション結果について記しており、使用したアルゴリズムやレート方程式について説明している。3.5 節では高添加濃度と低添加濃度のファイバを用いた増幅実験結果を比較した。それぞれ 532 nm でフォトブリーチングしながら増幅実験を行い、どちらのシステムが光格子用レーザー開発に適しているか評価した。低添加濃度のファイバを用いた場合ではこれまで報告されていない新しい波長の組み合わせによる 2 波長励起を行い、その最適励起パワー比を明らかにした。そして 50% 近い高いスロープ効率を実証し 810 nm 帯のファイバ光源の最高出力を更新する 1.95 W を達成した事について記した。一方で高い添加濃度の場合では Tm^{3+} 間相互作用によるエネルギー移動の効果によって 1 波長励起でも高い効率を示す事が明らかとなり、低添加濃度の場合と同程度のスロープ効率と 1 W 以上の出力を実証した。高添加濃度と低添加濃度の 2 種類の手法を比較するとシンプルなシステムで電力変換効率が小さい高添加濃度 1 波長励起の手法がより光格子用レーザー開発に適していると明らかになった。そしてその後の開発研究は高添加濃度 1 波長励起を基に進めた。光格子用レーザーの要求値である 1 W 以上の出力を高効率なシステムで得られたが、SNR(signal-to-noise ratio)が小さくノイズが大きいという問題が残った。そこで 3.6 節では新たにプリアンプを開発し

カスケードアンプにすることで ASE 抑制による低ノイズ化やフォトダークニング抑制、そして 1 日以上連続動作を実証し光格子用レーザーとして優れた特性を持つ事を示した。第 3 章の最後では本研究で開発したファイバ増幅器におけるフォトダークニング効果の信号光入力パワー依存性を測定した結果について記し、信号光をコントロールする事によるフォトダークニング抑制効果の有用性を示した。信号光の入力パワーを大きくする事でフォトダークニングが効果的に抑制される事を実証し、813 nm では 0.3 dB 以下の損失まで抑制できる事を示した。こういった実験は報告されておらず、これまで考えられていた Tm^{3+} 添加ファイバのフォトダークニング過程を裏付ける知見となっただけでなく、新しいフォトダークニング抑制手法として、その有用性が示された。

第 4 章では、本研究によって達成された出力や明らかになったメカニズムについてまとめている。また、他の光格子用レーザーと比較した結果についても記しており本研究で開発された光格子用レーザーの性能についてまとめている。

2. 原理

2.1. フッ化物光ファイバ

重金属元素とフッ素の化合物から構成される重金属フッ化物ガラスは1974年に Michel Poulain (Rennes 大学 フランス) のグループによって初めて発見され、 ZrF_4 - BaF_2 - NaF からなる化学的耐久性の高い重金属フッ化物ガラスの研究結果が報告された[27]。それまでもフッ化物ガラスの報告はあったが、強い潮解性や低い化学的耐久性から実用性が全く無いという認識であった。Poulain らの発表後、様々な重金属フッ化物ガラスの研究開発が行われ、 $0.2 - 7.0 \mu m$ もの広い透過光帯域を持つことやシリカガラスの持つ固有損失(0.12 dB/km)よりも理論上低い固有損失 0.01 dB/km を持つことが示された[28]。しかしファイバ製造の際に生じる不純物や結晶化によって伝送損失が大きくなるためシリカファイバよりも低い伝送損失は得られていないが、波長 $2 \mu m$ 以上の波長帯域においてはシリカファイバより低い伝送損失を持つため赤外光ファイバとして期待されている[29]。1980年ぐらいから広まった重金属フッ化物ガラスの新素材研究が段々と収束を見せていき、光通信用ファイバへの応用が可能な素材が絞られていった。現在では ZrF_4 - BaF_2 - LaF_3 - AlF_3 - NaF から構成される ZBLAN ガラス (1981年に初めて報告された ZrF_4 系ガラス[30]) が最も化学的に安定なフッ化物ガラスとして知られており、ファイバにする事も実現され ZBLAN ファイバを製造する企業から購入が可能である。ファイバ製造に必要な屈折率調整については ZBLAN ガラスに他の化合物を混合する事で可能である。例えば、 PbF_2 を加える事で屈折率を大きくなるため、ZBLAN をクラッド、 PbF_2 を加えたもの (ZBLANPb or ZBLANP) がコアとして使用できる。一方で Zr を Hf に置換することで屈折率を下がるため HZBLAN をクラッドに、ZBLAN をコアとして用いられる。カルコゲナイドファイバなどがフッ化物ファイバ以外の中赤外用ファイバとして知られているが、フッ化物ファイバはそれらと比較して屈折率がシリカファイバに近いのでシリカファイバとの親和性が高いという特徴を持つ。

2.1.1. 機械的特性

重金属フッ化物ガラスはシリカガラスなどの酸化物ガラスと比較してイオン結合性の強いガラスであり、 ZrF_6 で表される 6 配位の八面体や 6 個以上の F によって構成される多面体によってできている[30]。フッ化物ガラスはシリカガラスと比較して共有結合性よりイオン結合性がはるかに大きい。そのため、結合強度がシリカガラスよりも小さくなり結果として融点や硬度がシリカガラスよりも小さい値を持つ。ガラス形成のためには高温の融液を結晶成長しない冷却速度で冷却する必要がある。温度変化による構造変化は粘度と関係があり、ガラス転移温度(T_g)に冷却されていく過程で粘度は急激に増大し T_g では約 10^{13} P (ポアズ) の値を取ることが知られている[29]。 ZrF_4 ガラスは液相においてシリカガラスなどの酸化物ガラスよりも粘度が低く弱い液体(fragile liquid)と呼ばれ T_g に向かって温度変化するときの構造の変化が大きく結晶化を防ぐために早く急冷しなければならない[29], [31]。結晶化の少ない安定なガラス形成にはガラス転移温度と結晶化温度(T_x)の差($T_x - T_g$)が大きいことが求められるが、重金属フッ化物ファイバはその差が小さいため安定なガラス形成が比較的難しい。表 1 に ZrF_4 系ガラスにおけるガラス転移温度と結晶化温度の差を示すが、その中でも ZBLAN は大きい値を持ち ZBLAL よりも安定なガラス形成ができるため現在広く普及されている[31]。ZBLAN ファイバなどの重金属フッ化物ファイバを用いたレーザーシステムへの実用も期待されている。これまでに可視から赤外まで幅広い波長帯域でフッ化物ファイバを用いたレーザーシステムの開発が行われているが、シリカファイバと比較すると融点が低いため出力パワーは小さい。しかし、3 μ m 帯においてはシリカファイバの損失が大きいためフッ化物ファイバを用いた Er 添加ファイバレーザーや Ho 添加ファイバレーザーによって数十 W クラスの出力が達成されている[15]。フッ化物ファイバなどの低融点ガラスファイバは融点が低く、ファイバカプラやコンバイナといったファイバ素子の製造や低損失な癒着が難しい。このため全ファイバシステム化ができない事がフッ化物ファイバの欠点の一つでもあった。近年、細かい融着条件の調整が可能なファイバ融着機の登場などによりフッ化物ファイバとシリカファイバの低損失な融着も可能になってきた[32], [33]。さらに、フッ化物ファイバのコンバイナを用いたファイバレーザーやファイバアンプなどのシステムも登場してきた[34]。このように段々とフッ化物ファイバの欠点を克服できるノウハウが蓄積されつつあり、シリカファイバで構成されたレーザー光源との親和性が高まるとともにフッ化物ファイバ光源の信頼性も徐々に上がってきている。フッ化物ファイバの機械的特性はレーザー光源開発応用にとって足枷となっていたが、それも今日の技術向上

努力によって取り払われようとしている。

2.1.2. 光学的特性

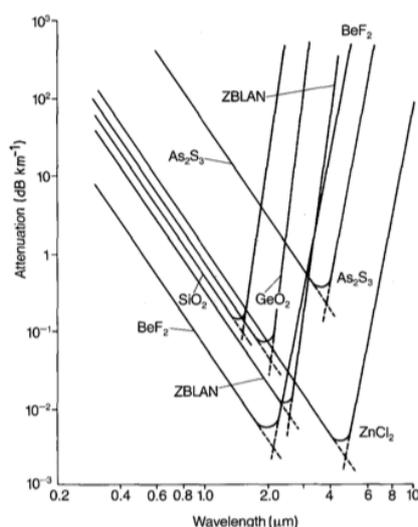


図 2.1 材料固有の理論的最小損失[146]

光ファイバの光損失は外部的要因(extrinsic losses)、材料固有の要因(intrinsic losses)そしてガラスの構造欠陥の3つに大きく分けられる。外部的要因は結晶の析出や気泡の混入による光散乱や遷移元素不純物による光吸収が原因である。この外部的要因は製造法を工夫することで除去することが可能である。材料固有の要因も光散乱と光吸収の2種類ある。光散乱については波長の4乗に反比例するレイリー散乱、ブリルアン散乱、そしてラマン散乱である[29]。光吸収は主にイオン間の共鳴振動に由来する[29]。ガラスの構造欠陥による損失は着色中心によるものやOH基の分子振動による光吸収がある[29]。材料固有の損失は式2.1に従うことが知られている[30]。ここでaやAは紫外(ultra violet, UV)吸収端を表し、cやCは赤外吸収端を、Bについてはレイリー散乱の係数を表している。λは波長である。ここでUV吸収の項は1μm以上の波長領域においてはレイリー散乱よりも十分小さく0と近似できるので材料固有の損失は短波長領域ではレイリー散乱、長波長領域では赤外波長に吸収ピークを持つ分子による吸収が支配的となり、その2つで描かれる損失のグラフはV字状となりそれが理論的最小損失を与える[30]。種々のガラスの理論的な損失を図2.1に示す[31]。

$$\alpha_{intrinsic} = A \exp\left(\frac{a}{\lambda}\right) + \frac{B}{\lambda^4} + C \exp\left(-\frac{c}{\lambda}\right) \quad (2.1)$$

Szigeti による実験的に導かれた理論では、赤外吸収周波数はイオン間の結合強度と換算質量に関係がある[35] (式 2.2)。 ω は波数、 μ は換算質量、 F は力の定数、 c は光速である。換算質量は陰イオンの質量を m_a 、陽イオンの質量を m_c とすると $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_a} + \frac{1}{m_c}$ となる。このようにフッ化物ファイバはシリカファイバと比較して結合強度が弱く換算質量も小さいため共鳴周波数が低くなる。

$$\omega = \frac{\sqrt{F}}{2\pi\mu} \quad (2.2)$$

光が持つ粒子的性質を光子 (光子) と呼び、一方で原子結合からなる格子振動の波を量子化した粒子的性質はフォノン (phonon、音子) と呼ばれる[36]。赤外吸収は伸縮振動や変角振動など複数のモードが励起される多フォノン吸収によって決まり、その吸収端は多フォノン吸収端(multiphonon absorption edge)と呼ばれる[30]。そしてフォノンの振動エネルギーは材料によって異なり SiO_2 は 1050 cm^{-1} という ZBLAN と比べて高い値を持っている[37] (表 2.1)。ZBLAN ガラスなど比較的フォノンエネルギーが小さいガラスは低フォノンエネルギーガラス(low phonon energy glass, LPE glass)と呼ばれる[37]。

表 2.1 種々のガラスのフォノンエネルギーと赤外吸収端[37]

Glass	Glass composition	Phonon energy in cm^{-1}	IR abs. edge in μm
SiO_2		1050	2.5
GN	$90\text{GeO}_2\text{-}10\text{NaO}_2$	850	-
GPBZK	$55\text{GeO}_2\text{-}20\text{PbO}\text{-}10\text{BaO}\text{-}10\text{ZnO}\text{-}5\text{K}_2\text{O}$	820	5.3
TB	$80\text{TeO}_2\text{-}20\text{BaO}$	610	-
ZBLAN	$53\text{ZrF}_4\text{-}20\text{BaF}_2\text{-}3.875\text{LaF}_3\text{-}3\text{AlF}_3\text{-}20\text{NaF}\text{-}0.125\text{InF}_3$	580	~7
IBZP	$29\text{InF}_3\text{-}18\text{BaF}_2\text{-}20\text{ZnF}_2\text{-}4\text{SrF}_2\text{-}6\text{PbF}_2\text{-}5\text{YF}_3\text{-}7\text{AlF}_3\text{-}2\text{LiF}\text{-}10\text{NaF}$	~510	~7
BIG	$20\text{BaF}_2\text{-}18\text{InF}_3\text{-}12\text{GaF}_3\text{-}20\text{ZnF}_2\text{-}10\text{YbF}_2\text{-}6\text{ThF}_4\text{-}4\text{ZrF}_4$	~450	7.5
CNBK	$33\text{CdCl}_2\text{-}17\text{CdF}_2\text{-}34\text{NaF}\text{-}13\text{BaF}_2\text{-}3\text{KF}$	370	~10
CdX	$\text{CdX}_2\text{-BaX}\text{-NaX}$ with high Cl-ratio	236	~10
GLS	$70\text{Ga}_2\text{S}_3\text{-}30\text{La}_2\text{S}_3$	425	~10

SiO_2 と比較して ZBLAN ファイバは赤外吸収端が長波長側にあるので理論的な材料固有の損失は小さくなる。しかし実際には、ZBLAN ファイバは製造中の微結晶析出によるレイリー散乱が大きいいため、シリカファイバよりも大きな伝

送損失を持つ[38]。種々のガラスの透過スペクトルを図 2.2 に示す[39]。中赤外の波長領域では ZBLAN ファイバの方が高い透過率を持つため ZBLAN ファイバは中赤外用ファイバとして知られる。

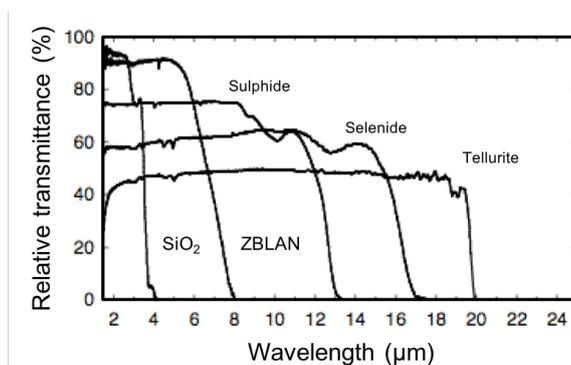


図 2.2 種々ガラスの透過スペクトル(材料厚み 2-3 mm) [39]

2.1.3. 伝搬モード

ファイバを伝搬する光はコア内で干渉し合うため、特定の伝搬状態を持つ光波の形態のみが導波される。この光波の形態はファイバの構造と光の波長によって決定され解析的に求めることができ、導き出される解はモードと呼ばれる[40]。光ファイバを伝搬する導波モードは LP(linearly polarized)モードと呼ばれる。

数値解析によって求められるモードは図 2.3 の交点に相当する。この図の LP01、LP11 はそれぞれの分散方程式から描画でき、 $u^2 + w^2 = v^2$ との交点の数からモードの個数が求まる。交点の u 、 w の値からコア、クラッド内の動径方向の波数 χ 、 σ が求められるので伝搬定数 β の値もわかる。図 2.3 はシミュレーションソフト matlab を用いて 2 分法によって計算した。

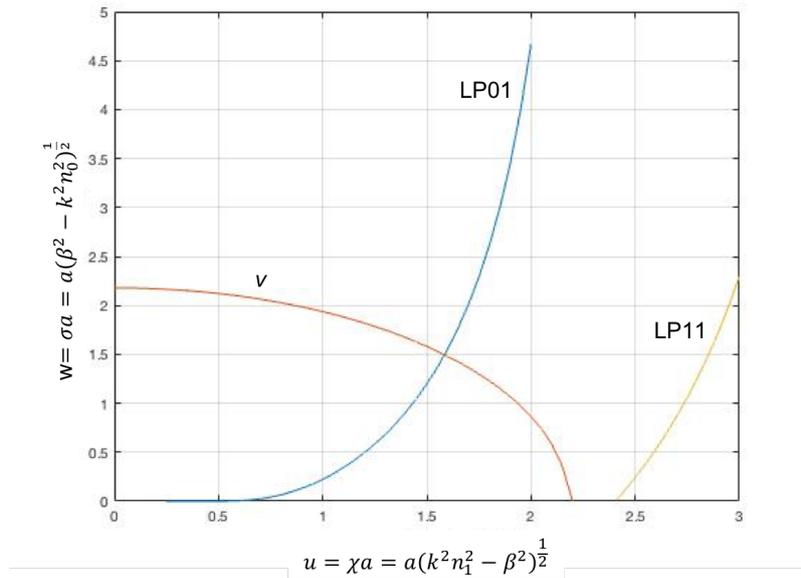


図 2.3 光ファイバの u-w 関係

正規化周波数 v については $v = k^2 a^2 NA$ より計算し、波長 813 nm、コア直径 4.7 μm 、 $NA=0.12$ の条件で計算した。図 2.3 からわかるように正規化周波数が大きくなると交点の数が増える。すなわち、モードの数が増える。2つ目のモード (LP11 モード) が導波される条件は $v \geq 2.404826 \approx 2.405$ であり、これを LP11 モードの遮断周波数 (カットオフ) と呼ばれる。つまり、 $v < 2.405$ の条件では LP01 モードのみが導波されるので単一モード (シングルモード) と呼ばれ、そういったファイバはシングルモード光ファイバと呼ばれる。一方で、 $v \geq 2.405$ では2つ以上のモードが導波されるので、そういったファイバはマルチモード光ファイバと呼ばれる。

2.2. ツリウム (Thulium) イオン

810 nm 帯の増幅に用いられるツリウム(Thulium)は元素記号が Tm で原子番号は 69 である。原子番号 57 の La から原子番号 71 の Lu までの原子はランタノイドと呼ばれ、希土類元素(rare earth)は Sc、Y およびランタノイド(Lanthanides)の総称である[38]。Tm の電子配置は以下の表 2.2 になっている。

表 2.2 Tm の電子配置

n=1	n=2		n=3			n=4				n=5		n=6
1s	2s	2p	3s	3p	3d	4s	4p	4d	4f	5s	5p	6s
2	2	6	2	6	10	2	6	10	13	2	6	2

それぞれの電子配置は主量子数、方位量子数、磁気量子数、およびスピン磁気量子数で決まる。主量子数は正の値をとり n が小さいほど軌道のエネルギーは小さくなる。次に、方位量子数は $l = 0, 1, 2, 3, \dots, n-1$ の値をとりそれぞれの軌道は s, p, d, f, ... と呼ばれる。さらに、磁気量子数 m は l に対して $m = -l, -l+1, \dots, +l$ の値をとる。そしてそれぞれの磁気量子数に対してスピン磁気量子数は $m_s = \pm \frac{1}{2}$ の 2 通りある。したがって、例えば 4f 軌道の場合は主量子数 $n = 4$ 、

方位量子数 $l = 3$ 、磁気量子数 $m = -3, -2, -1, 0, 1, 2, 3$ で 7 通り、そしてそれぞれに 2 通りのスピン磁気量子数が対応するため最大 14 個の電子を収容できる。そのため Tm は 4f 軌道が完全に満たされていない。また Ce から Yb までの希土類元素も 4f 軌道は完全には満たされておらず、希土類イオンの発光に関わる電子遷移はこの不完全殻内の電子配置の変化によって生じる。そして希土類イオンは 4f 軌道の外側に 5s および 5p 軌道の 8 個の電子があり 4f 軌道の電子に対する結晶場の影響がクーロン遮蔽されている[41]。つまり、d 軌道を最外殻にもつような遷移金属イオンなどと比較すると希土類イオンは結晶やガラス中でも発光・吸収スペクトルの中心波長が大きく変化することはない。

希土類元素は結晶やガラス中で 3 価のイオンになることが多い。Tm³⁺の場合、6s 軌道の電子 2 つと 4f 軌道の電子 1 つを失い 3 価のイオンとなる[41]。

Tm³⁺の基底状態を考える。電子配置は 4f³ となるので、12 個の電子がフントの規則に従い図 2.4 のように収容される。

磁気量子数	+3	+2	+1	0	-1	-2	-3
スピンの向き	↑↓	↑↓	↑↓	↑↓	↑↓	↑	↑

図 2.4 4f 軌道の電子配置

エネルギー準位は $^{2S+1}L_J$ と表わされる。ここで L は全軌道角運動量の量子数、 S は全スピン角運動量の量子数、そして J は全角運動量の量子数である。まず、Tm³⁺の全軌道角運動量の量子数 L については以下のようなになる[42]。

$$L = 3 \cdot 2 + 2 \cdot 2 + 1 \cdot 2 + 0 \cdot 2 + (-1) \cdot 2 + (-2) \cdot 1 + (-3) \cdot 1 = 5 \quad (2.3)$$

全軌道角運動量 L もアルファベットで表す慣わしがあり、 $L=0, 1, 2, 3, 4, 5, 6$,

... について $L=S, P, D, F, G, H, I, \dots$ と表される。よって Tm^{3+} の場合は H に対応する。全スピン角運動量の量子数は $S = \frac{1}{2} \cdot 2 = 1$ となる。したがって、全角運動量の量子数は

$$J = L + S, L + S - 1, \dots, |L - S| = 6, 5, 4 \quad (2.4)$$

以上から、 3H に属するエネルギー準位は ${}^3H_6, {}^3H_5, {}^3H_4$ の3つが考えられ、 Tm^{3+} の基底準位はエネルギー状態の低い 3H_6 となる。

2.2.1. エネルギー準位とエネルギー移動

図 2.5 に Tm^{3+} のエネルギー準位図を示す[43]–[47]。

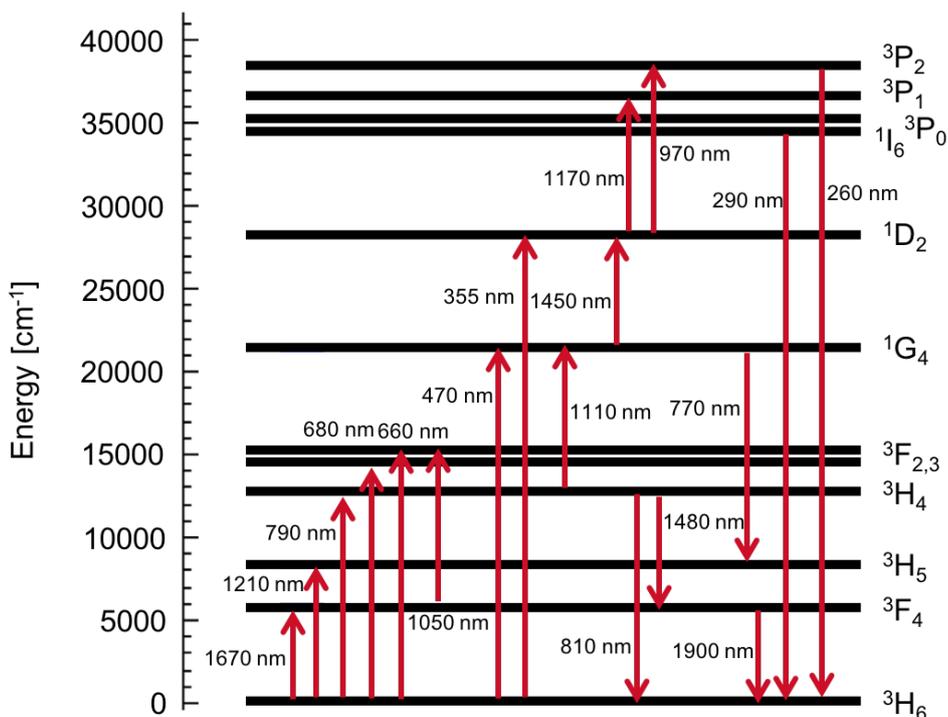


図 2.5 Tm^{3+} イオンのエネルギー準位図

図 2.5 のように Tm^{3+} は様々な波長に相当するエネルギー準位があり、それぞれのエネルギーに応じた光の吸収、発光をもつ。原子が2つのエネルギー準位 W_1, W_2 ($W_2 > W_1$) の間を遷移することを考える。下の準位にある原子の光吸収は入射光の強度に比例し、上準位にある原子の光放出は入射光がなくても生じる（自然放出）[48]。また、上準位の原子は入射光の強度に比例する光も放出するので（誘導放出）、単位周波数幅あたりの入射光のエネルギー密度を $\rho(\nu)$ とす

ると、上準位の原子が光を放出する確率は

$$W_{21} = A_{21} + B_{21}\rho(\nu) \quad (2.5)$$

と書ける[48]。ここで、 A_{21} は1個の原子が単位時間あたりに自然放出する確率（自然放出遷移率）を表し、 B_{21} は単位時間に誘導放出する確率（誘導放出遷移率）を表す。準位1から準位2への遷移は $W_{12} = B_{12}\rho(\nu)$ と表せる。また、それぞれ A_{21} はアインシュタインのA係数（自然放出係数）、 B_{21} はB係数（誘導放出係数）、 B_{21} もB係数（誘導吸収係数）と呼ばれる[49]。

次に熱平衡状態を考えると、一定時間内に準位1および準位2からそれぞれの準位に遷移する数は等しいのでそれぞれの準位の原子数を N_1 、 N_2 とすると

$$N_1 W_{12} = N_2 W_{21} \quad (2.6)$$

となる[12]。さらに、 $\frac{N_2}{N_1} = e^{-\frac{h\nu}{kT}}$ （ボルツマン分布）と、プランクの熱放射則から、

$$B_{12} = B_{21} \quad (2.7)$$

$$\frac{A_{21}}{B_{21}} = \frac{8\pi n^3 h \nu^3}{c_0^3} \quad (2.8)$$

となるのがわかる[12]。ここで n は媒質中の屈折率、 c_0 は真空中の光速、 ν は電磁波の振動数をあらわす。したがってアインシュタインのB係数は

$$W = W_{21} = W_{12} = \frac{A_{21} c_0^3}{8\pi n^3 h \nu^3} \rho(\nu) = \frac{\lambda^3}{8\pi h t_{spont}} \rho(\nu) \quad (2.9)$$

となる。ちなみに、 $t_{spont} = \frac{1}{A_{21}}$ は自然放出寿命を表す。原子遷移の形状関数 $g(\nu)$

を考慮すると、

$$W = \int \frac{A_{21} c_0^3}{8\pi n^3 h \nu^3} \rho(\nu) g(\nu) d\nu \quad (2.10)$$

とかける。そして、単色場のエネルギー密度 U_0 (J/m³)を考慮すると、単位周波数あたりのエネルギー密度 $\rho(\nu')$ は $\rho(\nu') = U_0 \delta(\nu' - \nu)$ と書いて、さらに光の強度

（パワー密度）は $I_0 = \frac{c U_0}{n}$ (W/m²)と書けるので、

$$W = \frac{\lambda^2 g(\nu)}{8\pi n^2 h \nu t_{spont}} I_0 \quad (2.11)$$

と表され、ここでの $g(\nu)$ は $\int_0^\infty g(\nu) = 1$ で規格化された形状関数（線状関数、

lineshape function）を表す[50]。

次に、遷移断面積 $\sigma(\nu)$ を

$$\sigma(\nu) = \frac{\lambda^2 g(\nu)}{8\pi n^2 t_{spont}} \quad (2.12)$$

とすると遷移率は

$$W = \sigma(\nu) \frac{I}{h\nu} \quad (2.13)$$

とかける。

エネルギー準位間の遷移は基底状態からの光励起による遷移、励起状態からの光励起による遷移（励起状態吸収、excited state absorption (ESA)）、イオン間のエネルギー移動（energy transfer (ET)）などがある。

ESA はいくつかの光子による励起によって励起光の波長よりも短い波長の蛍光が可能となる。このプロセスはアップコンバージョンと呼ばれ、それによって生じる蛍光はアップコンバージョン蛍光と呼ばれる[41], [46]。

イオン間のエネルギーは発光と非発光に分けられ、発光が関係してエネルギー移動が生じる現象を放射移動（radiative transfer）と呼ぶ[28], [41]。放射移動の場合はある一つのイオンが発光した光子を他のイオンが吸収する現象であり、蛍光スペクトル形状の変化や蛍光寿命の長寿命化を招く。しかし、多くの場合は放射移動によって移動するエネルギー量は多くなく、光子を介在せずに近いイオン同士でエネルギー移動する非発光過程の方が大きい[28], [41]。エネルギー移動は図 2.6 のように、(a)励起移動（migration）、(b)交差緩和（cross-relaxation）、(c)共同アップコンバージョン（cooperative up-conversion）に分けることができる[28], [41]。エネルギー移動によってアップコンバージョンすることからエネルギートランスファーアップコンバージョン(energy transfer up-conversion (ETU)) とも呼ばれる[51]。

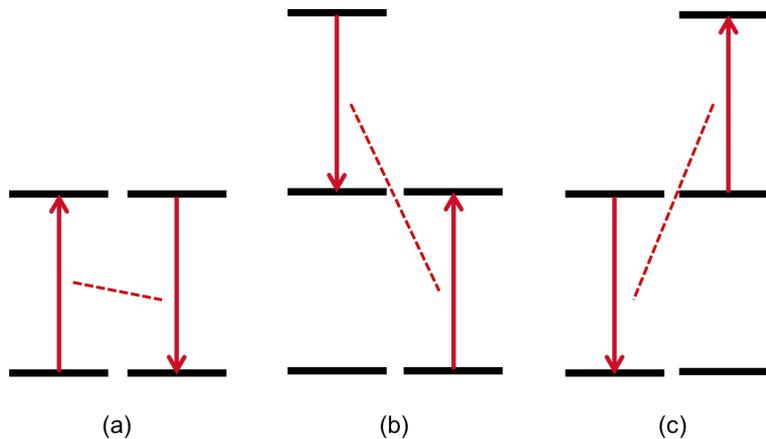


図 2.6 イオン間エネルギー移動

(a)migration, (b)cross-relaxation, (c)cooperative up-conversion

エネルギー移動率は電気双極子-電気双極子間相互作用 (electric dipole-dipole interaction, EDD) が主なエネルギー移動だと仮定して算出される場合が多く[41]、距離 R だけ離れた2つのイオン間のエネルギー移動率は

$$W_{sa} = \frac{W_s}{R^6} \frac{3}{4\pi} \left(\frac{\hbar c}{n}\right)^4 Q_a \int \frac{f_s^{ems}(E) f_a^{abs}(E)}{E^4} dE = W_s \left(\frac{R_{cr}}{R}\right) \quad (2.14)$$

と表され、Dexter's formula と呼ばれる[16,17]。添字の s (sensitizer) は励起されたイオン A からイオン B にエネルギーが移動する時のイオン A のことを指し、ドナー(donor)とも呼ばれる。また、添字 a (アクセプタ、acceptor) はイオン B のことを表す。 W_s はイオン間相互作用がない場合のドナーの自然発光緩和率 (ドナーの蛍光寿命の逆数 $\frac{1}{\tau_s}$) を表し、 n は屈折率、 Q_a はアクセプタの吸収断面積を

積分したものである。また、 $\hbar = \frac{h}{2\pi}$ の関係があり、 f_s^{ems} と f_a^{abs} は規格化された

($\int f(E) dE = 1$) 蛍光断面積と吸収断面積のスペクトルを表すので、積分の成分はそれらの畳み込み積分となる。そして、 R_{cr} は critical interaction distance と呼ばれエネルギー移動率とドナーの自然発光緩和率が等しくなるドナーとアクセプタのイオン間距離である[41],[52]。 R はドナーとアクセプタのイオン間距離を表している。 R の逆数が濃度に相当するため、エネルギー移動率は濃度と自然発光寿命で表される関数である。つまり、濃度が大きくなると測定される蛍光寿命が小さくなる。

Tm^{3+} イオンを 810 nm 帯で発光させるには 3H_4 準位に励起しなければならない。 3H_4 準位からの遷移を用いた Tm^{3+} 添加ファイバによるレーザー光源は、780 nm 帯の Ti:Sapphire レーザーや、1 μm 帯の Yb ファイバレーザー、そして 690 nm 帯の LD (laser diode) などを用いた励起が実証されている。(表 2.3)。

表 2.3 Tm^{3+} イオンの $^3H_4 - ^3H_6$ 遷移を用いたファイバレーザー CW 光源

出力波長 [nm]	スロープ効率	最高出力 [W]	励起波長 [nm]	参照
810	37%	1.2	1064	[23]
785	17.8%	0.5	1125	[22]
806	50.3%	0.015	687	[24]
810	85%	0.08	778	[25]
813	8%	1.1	1064	[26]

${}^3\text{H}_4\text{-}{}^3\text{F}_4$ 遷移 (1480 nm) を用いた光源も様々な励起波長で研究されている。1480 nm 帯のファイバ増幅器は S-Band と呼ばれる光通信波長に相当し、ファイバ増幅器の開発が盛んであった[37]。表 2.4 に S-Band 用ファイバ増幅器の実証例をいくつか示す。特に、2 波長励起の結果を表 2.4 に示した。

表 2.4 2 波長励起による S バンドファイバ増幅器

励起波長 [nm]	利得 [dB]	参照
1047 + 1560	20	[53]
1238 + 1400	10	[54]
800 + 1050	26	[55]
1050 + 1550	28	[56]
690 + 1560	10	[57]

2.3. Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバ

励起されたイオンの蛍光寿命 τ は輻射遷移確率 W_{RD} と無輻射遷移確率 (無輻射緩和速度) W_{NRD} を用いて以下のように表される[58]。

$$\frac{1}{\tau} = \sum W_{RD} + \sum W_{NRD} \quad (2.15)$$

ここで、無輻射遷移確率には多フォノン緩和やエネルギー移動が含まれる。無輻射緩和確率が高くなると蛍光寿命が短くなる。希土類イオンの濃度が小さい場合はエネルギー移動による無輻射緩和を無視することができるので

$$\frac{1}{\tau} = \sum W_{RD} + W_{MP} \quad (2.16)$$

と書くことができる。 W_{MP} は多フォノン緩和確率 (多フォノン緩和速度) である。そして、ある温度 T の場合における多フォノン緩和確率は

$$W_{MP}(T) = C[n(T) + 1]^q \exp\left(-\frac{\alpha_p \Delta E}{\hbar\omega}\right) \quad (2.17)$$

と表される[58]。 C は $\Delta E = 0$ 、 $T = 0$ における緩和確率、 ΔE は励起されている準位と、そのすぐ下の準位とのエネルギー差であり、 $n(t)$ と α_p 、そして q は以下のように

$$n(T) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{kT}\right) - 1} \quad (2.18)$$

$$\alpha_p = \ln\left(\frac{q}{g_{ep}(n+1)}\right) - 1 \quad (2.19)$$

$$q \sim \frac{\Delta E}{\hbar\omega} \quad (2.20)$$

と表すことができ、 $n(T)$ は $\hbar\omega$ のエネルギーをもつフォノンの分布確率、 g_{ep} は電子-フォノン結合強度であり、 q は緩和によって消費されるフォノン数を表し、そして $h\nu$ は無輻射遷移に関わるフォノンのエネルギーを表している。これより、多フォノン緩和速度が大きくなる条件は、フォノンエネルギーが大きい、そしてフォノン数 q が小さい、電子-フォノン結合強度が大きい、そして温度 T が高いという条件である。多フォノン緩和速度が大きいと蛍光寿命が小さくなってしまふ。 $\alpha = \frac{\alpha_p}{\hbar\omega}$ とすると

$$W_{MP}(T) = C[n(T) + 1]^q \exp(-\alpha\Delta E) \quad (2.21)$$

と書き直せる。 C 、 α 、 q の値は素材によって異なる。種々のガラスにおけるそれぞれのパラメータを表2.5に示す[41]。

表 2.5 種々素材における非輻射緩和率を決定するパラメータ[41]

ホストガラス	$C [s^{-1}]$	$\alpha [10^{-3} cm]$	$\hbar\omega [cm^{-1}]$
ほう酸塩ガラス	2.9×10^{12}	3.8	1400
りん酸塩ガラス	5.4×10^{12}	4.7	1200
けい酸塩ガラス	1.4×10^{12}	4.7	1100
ゲルマン酸塩ガラス	3.4×10^{10}	4.9	900
テルライトガラス	6.3×10^{10}	4.7	700
フッ化物ガラス	1.59×10^{10}	5.19	500
カルコゲナイドガラス	10^6	2.9	350
LaF ₃ (crystal)	6.6×10^8	5.6	350

図 2.7 にそれぞれ種々ホストガラスの準位間エネルギーギャップに対する無輻射緩和率を示す[59]。図 2.7 より、例えばエネルギーギャップの小さい準位からの緩和では、フォノンエネルギーの大きい素材の方が大きな無輻射緩和率をとり、励起されたイオンの多くが多フォノン緩和するため蛍光寿命が短くなってしまふ。フッ化物ファイバなどの低フォノンエネルギーガラスは比較的、無輻射緩和率が小さいためシリカガラスに比べて長い上準位寿命をもつ。

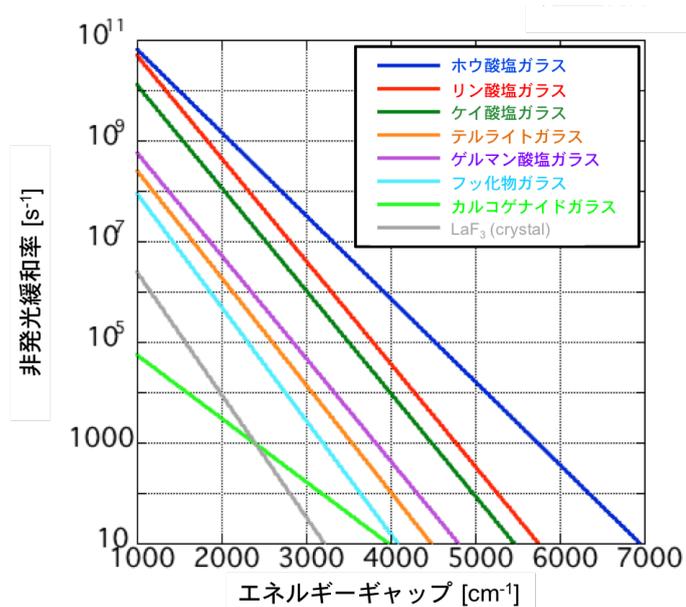


図 2.7 種々ホストガラスにおける非輻射緩和率のエネルギーギャップ依存性

Tm^{3+} 添加フッ化物ファイバの上準位寿命と、比較として Tm^{3+} 添加シリカファイバの上準位寿命を表 2.6 に示す[60]–[62]。このように蛍光寿命はフッ化物ガラスの方が大きい。

表 2.6 ホストガラスの違いによる Tm の蛍光寿命[60]–[62]

	$^3F_4 \rightarrow ^3H_6$	$^3H_4 \rightarrow ^3H_6$	$^1G_4 \rightarrow ^3H_6$
ZBLAN	9000 μs	1350 μs	1110 μs
Standard silica	334.7 μs	14.2 μs	783.9 μs

2.4. ファイバ増幅器の動作原理

ここでは、ファイバ増幅器の基本原理を説明する。

レーザー増幅器の動作原理はレート方程式を解く事でその特徴を理解できる。ここでは、簡単な3準位モデルのレート方程式について説明する。

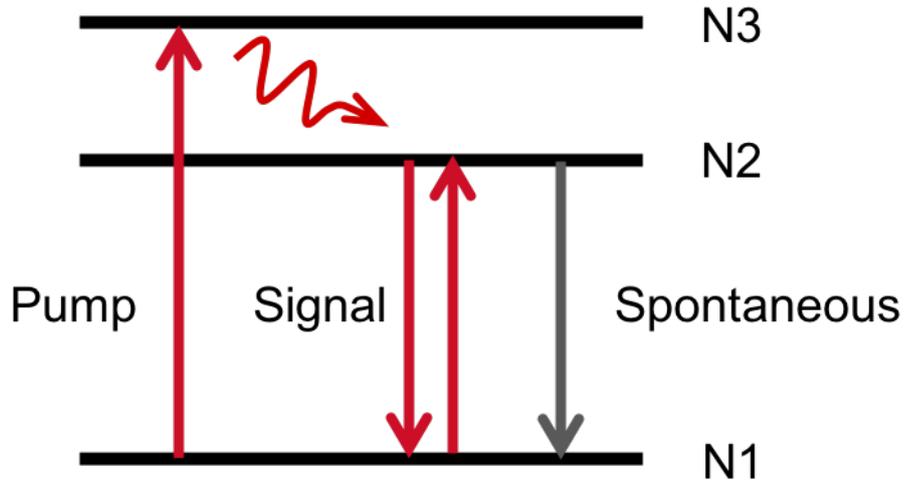


図 2.8 3 準位モデル

図 2.8 のような 3 準位のモデルについてレート方程式を考えると以下のようになる。

$$\frac{dN_3}{dt} = R_{13}N_1 - A_{31}N_3 - A_{32}N_3 \quad (2.22)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = W_{12}N_1 - W_{21}N_2 - A_{21}N_2 + A_{32}N_3 \quad (2.23)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -R_{13}N_1 - W_{12}N_1 + W_{21}N_2 + A_{21}N_2 + A_{31}N_3 \quad (2.24)$$

しかし、 N_3 からの遷移はほとんど N_2 に起こり、原子数密度 N_3 が他の準位に比べて十分小さい。以上のことを考慮した定常状態でのレート方程式は

$$0 = R_{13}N_1 - A_{32}N_3 \quad (2.25)$$

$$0 = W_{12}N_1 - W_{21}N_2 - A_{21}N_2 + A_{32}N_3 \quad (2.26)$$

$$0 = -R_{13}N_1 - W_{12}N_1 + W_{21}N_2 + A_{21}N_2 \quad (2.27)$$

$$N_t = N_1 + N_2 \quad (2.28)$$

となる。ここで N_t は全原子数密度をあらわす。

A_{ij} (i, j はそれぞれ遷移前、遷移後の準位の番号) はそれぞれの準位からの自然緩和率である。 R_{mn} や W_{mn} は準位 $m \rightarrow$ 準位 n への励起率と遷移率であり

$$R_{mn} = \frac{\sigma_{pmn}(\nu_p)}{h\nu_p} I_p \quad (2.29)$$

$$W_{mn} = \frac{\sigma_{smn}(v_s)}{h\nu_s} I_s \quad (2.30)$$

と書ける。ここで σ_{pmn} は励起波長における遷移断面積であり、 W_{mn} における σ_{smn} は信号光波長における遷移断面積である。 I_p と I_s は励起光と信号光の強度である。次に、励起光と信号光の伝搬方程式は

$$\frac{dI_p}{dz} = \mp \Gamma_p \sigma_{p01} N_1 I_p \mp \alpha_p I_p \quad (2.31)$$

$$\frac{dI_s}{dz} = \Gamma_s (\sigma_{s20} N_2 - \sigma_{s02} N_1) I_s \mp \alpha_s I_s \quad (2.32)$$

となる[63]。 α はファイバ内での損失である。ここでの Γ はオーバーラップファクターと呼ばれ、ファイバを伝搬する光とコアがオーバーラップする割合を表しステップインデックスファイバにおける基底モードの場合は

$$\Gamma = 1 - e^{-\frac{2b^2}{w_0^2}} \quad (2.33)$$

とかける[63]。 b はイオンドーナツ半径、 w_0 はモードフィールド半径で

$$w_0 = a \left(0.761 + \frac{1.237}{V^{1.5}} + \frac{1.429}{V^6} \right) \quad (2.34)$$

と表せ、 a はコア直径である。

2.5. 外部共振器型半導体レーザー(ECLD : External Cavity Laser Diode)

ここでは、マスターレーザーに用いた外部共振器型半導体レーザー(ECLD)の基本原理について説明する。

ECLDは単一波長(単一縦モード)で狭線幅なレーザーであり、さらに堅牢性に優れている小型なレーザーである。同様な特性を持つ他のレーザーとしてファイバDFB(distributed feedback)レーザーやファイバDBR(distributed Bragg reflector)レーザーがあるがこれらのレーザーは一般的に1nm程度の掃引波長帯域しかない。一方でECLDは100nm程度の広い掃引波長帯域を持つ[64]。

ECLDは片側がAR(anti-reflection)コーティングされたLDと外部鏡を用いる

事で共振器長が長くなり、狭線幅なレーザーとなる。そして単一縦モード発振を実現させるために共振器内に回折格子や干渉フィルターが用いられる。回折格子型の ECLD は以下の図のような構成である。一般的に Littman 型の方が共振器長を長くすることができるが、オプティクスが多いため Littrow 型よりも出力が小さくなるといった特徴がある[65]。

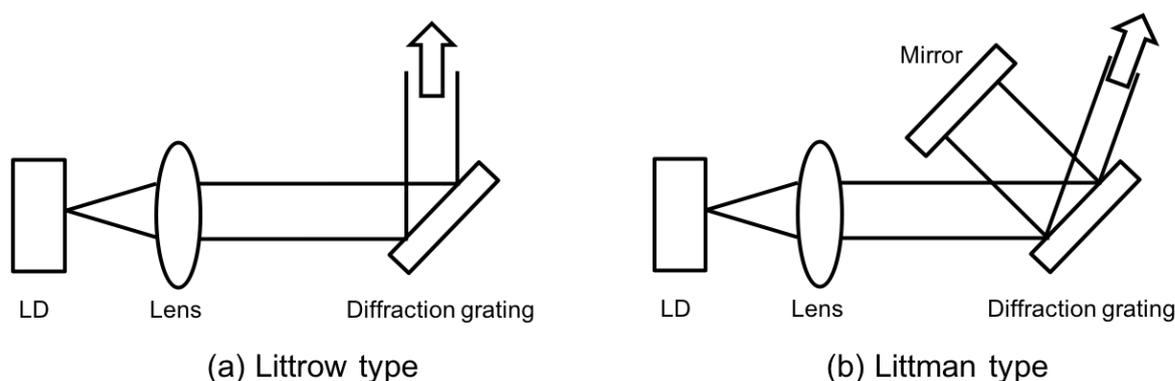


図 2.9 回折格子型 ECLD

回折格子型の ECLD は機械的もしくは熱由来の変形によってミスアライメントが生じ事や、リットロウ (Littrow) 型では出射ビームの光軸が波長に依存してしまうといった欠点がある[66]。一方で干渉フィルターを用いた場合は波長選択素子としてはたらくフィルターの傾きを変えることで波長を大きく掃引できる。さらにキャッツアイ構造を取ることで共振器内への反射と出射の光軸が変化しにくい特徴を持つため、波長掃引や熱などに対して光軸がずれにくい堅牢なレーザーとなる[67]。

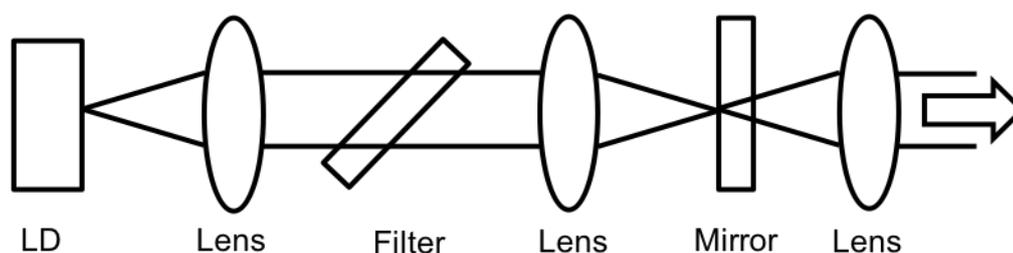


図 2.10 フィルター型 ECLD

さらに近年では、ファイバカップル型の ECLD によって数 kHz の周波数線幅が実現されている[64]。

2.6. 利得飽和

背景で少し説明したが、MOPA は低パワーで安定なレーザーを光増幅器で高出力化するシステムであり安定かつ高出力な光源になり得る。波長の調整や安定化は低パワー光源の方がより簡単であり、その光が増幅器で高出力化されるため、MOPA は狭線幅、波長可掃引、パルス動作が可能で安定なハイパワー光源開発を可能にする[4]。そのため、MOPA は精密分光や空間通信、LIDAR(Light-Imaging Detection and Ranging)、重力波検出器用光源など多くのアプリケーションがある[3], [4], [68]–[70]。

増幅器で増幅される光は以下のように表すことができる。

$$I(z) = I(0) \exp(\gamma z) \quad (2.35)$$

この式で $I(z)$ は利得媒質中を z 進んだ時の信号光強度、 $I(0)$ 入射直後の信号光の強度、 γ は単位長さあたりの光子束密度の利得、 z は信号光が利得媒質中を進んだ距離である。

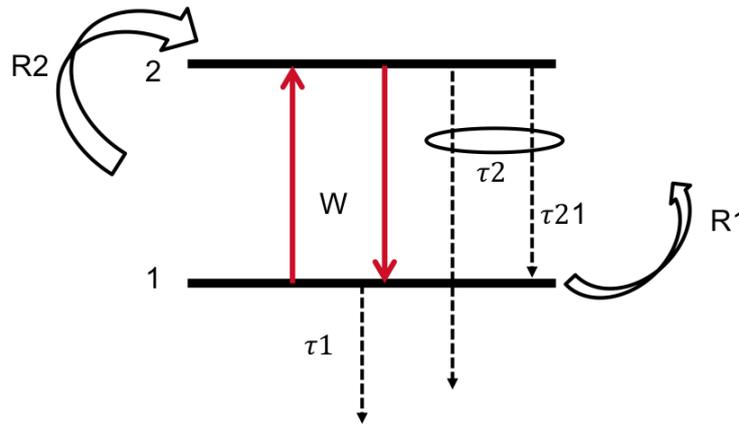


図 2.11 エネルギー準位 1 と 2 の遷移過程の概略図

次に、誘導放出に関する 2 つのエネルギー準位だけ考えた場合 (図 2.11)、レート方程式を計算すると以下のような関係になる[71]。

$$N = \frac{N_0}{1 + \tau_s W} \quad (2.36)$$

$$\tau_s = \tau_2 + \tau_1 \left(1 + \frac{\tau_2}{\tau_{21}} \right) \quad (2.37)$$

$$N_0 = R_2 \tau_2 \left(1 - \frac{\tau_1}{\tau_{21}} \right) + R_1 \tau_1 \quad (2.38)$$

N は原子数密度差、 N_0 は誘導遷移がない場合の原子数密度差、 W は誘導遷移率、 R_1 と R_2 はそれぞれのエネルギー準位からの励起率、 τ は図 2.9 で表されるそ

それぞれのエネルギー準位からの自然放出寿命である。この式から W が大きくなると原子数密度差が減少していくことがわかる。次に、 $W = \frac{I}{h\nu}\sigma$ を代入すると (σ は遷移断面積)

$$N = \frac{N_0}{1 + \phi/\phi_s} \quad (2.39)$$

ここでの ϕ は光子束密度 $I/h\nu$ である。ここで、

$$\phi_s = \frac{1}{\tau_s\sigma} \quad (2.40)$$

は飽和光子束密度とよばれる[71]。 $\gamma = N\sigma$ より

$$\gamma = \frac{\gamma_0}{1 + \phi/\phi_s} \quad (2.41)$$

$$\gamma_0 = N_0\sigma \quad (2.42)$$

と書き換えられ、信号光の光子束密度が大きくなると単位長さあたりの利得係数が小さくなることがわかる。つぎに、 $d\phi = \gamma\phi dz$ より

$$\frac{d\phi}{dz} = \frac{\gamma_0\phi}{1 + \phi/\phi_s} \quad (2.43)$$

となるので、これを解くと

$$[\ln(Y) + Y] = [\ln(X) + X] + \gamma_0 d \quad (2.44)$$

ここで、 $X = \phi(0)/\phi_s$ と $Y = \phi(d)/\phi_s$ はそれぞれ飽和光子束密度で規格化された入射光子束密度と利得長 d の利得媒質によって増幅された光子束密度である。

X 、 Y がともに小さい時は $Y \approx X \exp(\gamma_0 d)$ であり、小信号利得をあらわしている。 $X \gg 1$ の場合は $Y \approx X + \gamma_0 d$ となる。このように大きく飽和する場合は、増幅パワーは入力光の強度に依存しないで一定のパワーが付加された出力になる[71]。

2.7. フォトダークニングとフォトブリーチング

ここでは、ファイバレーザー光源のフォトダークニング (PD) やブリーチング効果について説明する。

フォトダークニング(PD: photodarkening)とは、ある媒質が紫外や可視域などの

波長帯の高出力なレーザーで照射されることによって吸収種が媒質中に生じ可視域から近赤外の波長域にかけてその媒質の透過率が減少する事であり、カラーセンターや材質の構造変化によって吸収種が形成されると考えられているが、その発生メカニズムや原理については未だ解明されていない[72], [73]。しかし、この PD によって生じる損失を抑制、もしくは緩和する手法は報告されており、熱によるブリーチング（サーマルブリーチング: thermal bleaching）や、光によるブリーチング（フォトブリーチング: photobleaching, PB）、また共添加やガス導入を用いた手法などが報告されている[74]–[77]。

PD による透過パワーの時間変化（損失の時間変化）は実験的に以下の式によって良い近似でフィッティングできることが知られており、PD の評価にしばしば用いられる[78]。

$$-10 \frac{1}{L} \log \left(\frac{P(t)}{P_0} \right) = \alpha \left[1 - \exp \left(- \left(\frac{t}{\tau} \right)^\beta \right) \right] \quad (2.45)$$

この式はストレッチド指数関数（stretched exponential）と呼ばれる非指数関数である。P₀はダークニング前の媒質からの透過パワー、P(t)はダークニングによって時間変化した透過パワー、Lは媒質の長さ、tは時間、αはt ≫ τにおけるダークニングが飽和した状態の損失（定常状態時の損失）、τは時定数、そしてβはストレッチングパラメータ（stretching parameter）と呼ばれる係数である[79]。1/τはフォトダークニングレート(PD rate)とよばれ、PDによって生じるファイバの損失の変化を定量的に比較評価する際によく用いられる。しかし、未だこの式の数学的導出などについては解明されていない[79]。

2.7.1. Yb³⁺添加ファイバのフォトダークニング

Yb³⁺は²F_{7/2}の基底準位と²F_{5/2}の上準位のみをもち、Yb³⁺添加ファイバレーザーは高出力なレーザーとして広く知られている一方で長期動作時にはPDの影響を受けてしまう。Yb³⁺添加ファイバのフォトダークニングについては以下の依存性が報告されている。

- 上準位に励起される原子数依存性[80]
- 励起波長依存性[81]
- 添加濃度依存性[73], [82], [83]
- クラスタリング依存性[72], [84]

- Al、P、Ce 共添加によるコア材質依存性[76], [85]–[87]
- 温度依存性[88]–[90]
- 欠陥依存性[75], [91]–[93]

これらの関係から Yb³⁺添加ファイバにおける PD の原因やメカニズムに関して様々な報告がされている。Yb³⁺ファイバのフォトダークニングについては、電荷移動 (CT : charge transfer) による Yb²⁺の形成[91]や酸素欠陥[84]、そして Tm[79]などが主な原因だと考えられており、ここではそれらについて説明する。

2.7.1.1. 電荷移動遷移によるフォトダークニング

まず、CT による PD について説明する。

ここでの PD は、CT 遷移に励起された Yb³⁺によって電子が移動し Yb²⁺が形成され、電子が移動した際に形成されたホールと Yb²⁺による吸収が生じる、というものである。[91]の報告では、還元性雰囲気によって Yb²⁺が生じること[94]を参考に 100%の酸素雰囲気中の内付化学気相堆積法(MCVD:modified chemical vapor deposition)法によって Yb²⁺が存在しにくい Yb³⁺添加シリカガラスのプリフォームを製造した。次に比較として、酸素フリーの還元性雰囲気で作られた Yb²⁺が存在するプリフォームを用意しそれらの吸収スペクトルと UV 照射時の発光を観測する実験を行う事で、Yb²⁺の影響について評価している。その結果から、Yb²⁺に由来する吸収スペクトルが 22,000-55,000 cm⁻¹ の領域に存在し、この吸収波長が Yb²⁺の 4f-5d 遷移に相当することから可視域の吸収が Yb²⁺に由来する事が示唆された。次に、これらのサンプルに 313 nm の光を照射すると Yb²⁺が存在するサンプルから 510 nm と近赤外の発光が観測され、Yb²⁺の存在しないサンプルからは近赤外の発光のみが観測された。この結果から、510 nm の発光が Yb²⁺に由来すると考えられた。

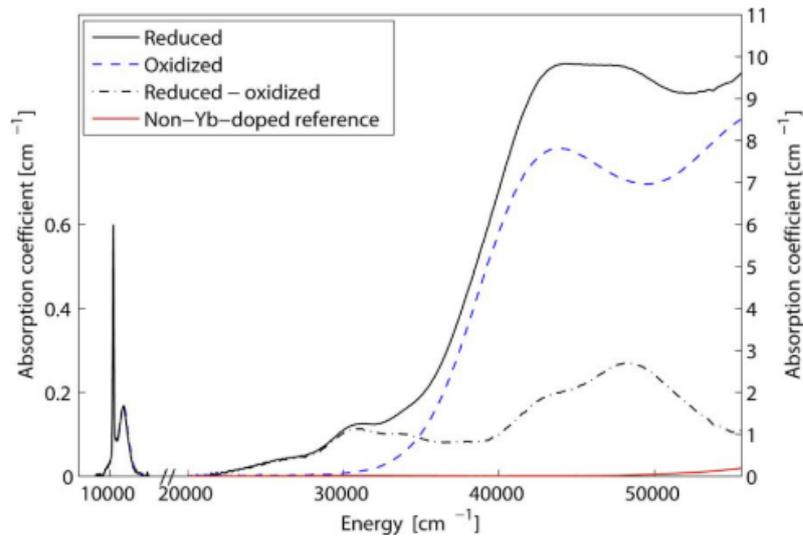


図 2.12 吸収スペクトル(Reduced: Yb^{2+} が存在するガラス、Oxidized: Yb^{2+} が存在しないガラス、Reduced-oxidized: Yb^{2+} に由来する吸収、Non-Yb-doped reference: Yb が添加されていないガラス) [91]

その後報告された論文では、 Yb^{3+} が添加されたプリフォームに 230 nm 帯の UV 光を照射して CT バンドに励起したサンプルと、 Yb^{3+} が添加されたファイバを 915 nm で励起してフォトダークニングさせたサンプルの吸収スペクトルを調べている[85]。この論文で、UV 光によって CT バンドに励起された Yb 添加プリフォームの吸収スペクトルと 915 nm で励起してカラーセンターが生じた Yb 添加ファイバの吸収スペクトルが同様なピーク (540 nm) を持つことがわかり同じカラーセンターが形成されていると考えられた。つまり、915 nm 励起によって生じた PD が CT バンド由来であると示唆された。また、吸収スペクトルの解析結果から 2 つの CT 準位 (CTS: charged transfer state) を持つことがわかり、エネルギーの大きい CTS がカラーセンターの形成に関係していると示された。これらの結果より、図 2.13 のようなモデルが考えられる。CTS*への励起によって電荷移動が生じ、その結果 Yb^{2+} と配位子のホールによるカラーセンターが形成される。これが CTS によって PD が生じる過程である。CTS への励起過程について 2 つの過程が言及されている。1 つは Yb イオンペアによる中間準位の形成、もう一方は多光子吸収(MPA: multi-photon absorption)である。 Yb^{3+} 添加ファイバの PD は添加濃度が高い時や反転分布が大きい時に強くなることが知られているにもかかわらず、 Yb^{3+} 添加ファイバ中での Yb イオンペアによる緑色の発光が小さい反転分布の時や低添加濃度時にも観測されるため MPA による励起過程が有力だと述べられている[85]。しかし、PD と協同発光 (CL: cooperative luminescence) が Yb 添加濃度の 2 乗に依存する事も報告されており[95]、Yb イオンペアによ

る PD 発生過程も関係していると考えられる。そういった理由から、未だ Yb^{3+} 添加シリカファイバの CTS への励起過程は明らかにされていない。

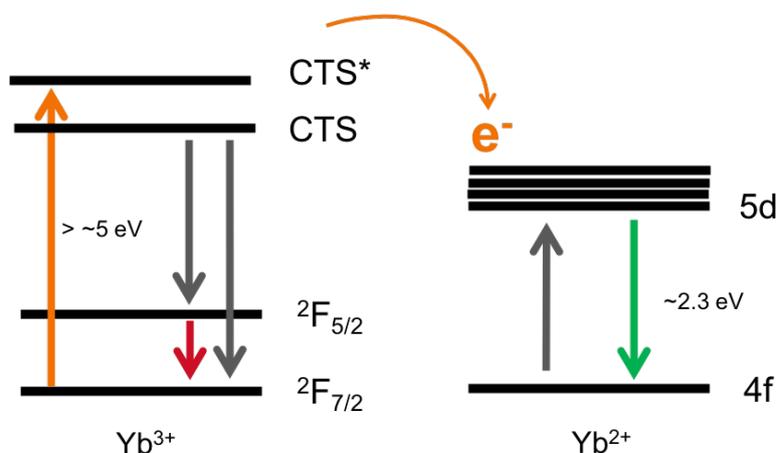


図 2.13 CTS による Yb^{2+} の形成

2.7.1.2. 酸素欠乏欠陥によるフォトダークニング

次に酸素欠乏欠陥 (ODC: oxygen deficiency center) による PD について説明する。ODC はシリカガラス中の点欠陥の 1 つで ODC(I) と ODC(II) がある。ODC(I) は $\equiv \text{Si} - \text{Si} \equiv$ の化学式で表され、Si 同士が結合している欠陥である。一方で、ODC(II) は $\equiv \text{Si} \dots \text{Si} \equiv$ で表され、Si 同士が結合していない欠陥である[96]。[84]では Yb^{3+} 添加アルミノケイ酸塩(aluminosilicate)ガラスファイバの PD について調べており、220 nm や 230 nm の紫外吸収が ODC に由来すると述べられている。その理由は、紫外吸収スペクトルが[97]で調べられている Yb^{2+} の吸収スペクトルと異なるためである。そして、このファイバに 488 nm の光を照射すると 220 nm の吸収が増加することが報告されている。これについては 488 nm の 2 光子が PD に関与していると言及されている。さらに、酸素ガスを導入することで PD の吸収が減少したことや、Al 濃度の増加による PD の抑制効果からも PD が ODC 由来であると言及されている。

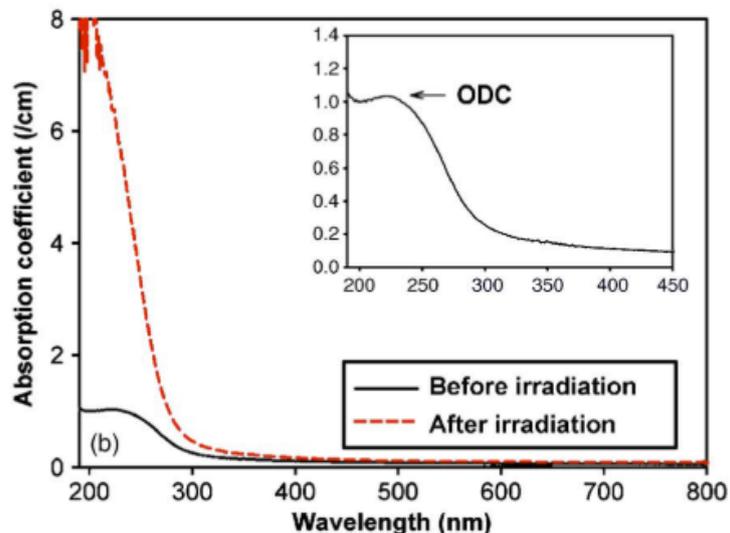


図 2.14 488 nm 照射前後の吸収係数[84]

ODC による PD は図 2.15 のように 488 nm の 2 光子が ODC を破壊し放出された電子が Yb や Al にトラップされる過程によって生じると考えられた。



図 2.15 ODC によるフォトダークニングの概略図

他のシリカガラス中の欠陥に非架橋酸素欠乏欠陥(NBOHC: non-bridging oxygen hole center)があり、 $\equiv Si-O\cdot$ であらわされ (\cdot は不対電子) 1.9 eV の発光と 2.0 eV に吸収をもつ[93]。光誘起吸収(photoinduced absorption)によって、これらの欠陥の吸収増加や赤波長まで伸びた広帯域な吸収が生じるため PD の原因と考えられている。[93]では 532 nm のレーザーで NBOHC を励起した時の発光を調べており、Yb の添加濃度の増加によって NBOHC が増加する事や PD が強くなる事から、添加された希土類と配位した欠陥もしくは隣り合った欠陥が PD に影響すると考えられ以下のようなエネルギー準位モデルが提示された。この図において、破線の矢印で示された励起過程は Yb³⁺の協同過程による励起であり、波線はフォノン緩和、そして実線(太線)は光子による発光、細線は光子による励起をあらわしている。この過程によって生じる紫外光の発光が光誘起吸収をおこし、PD が生じると考えられている。

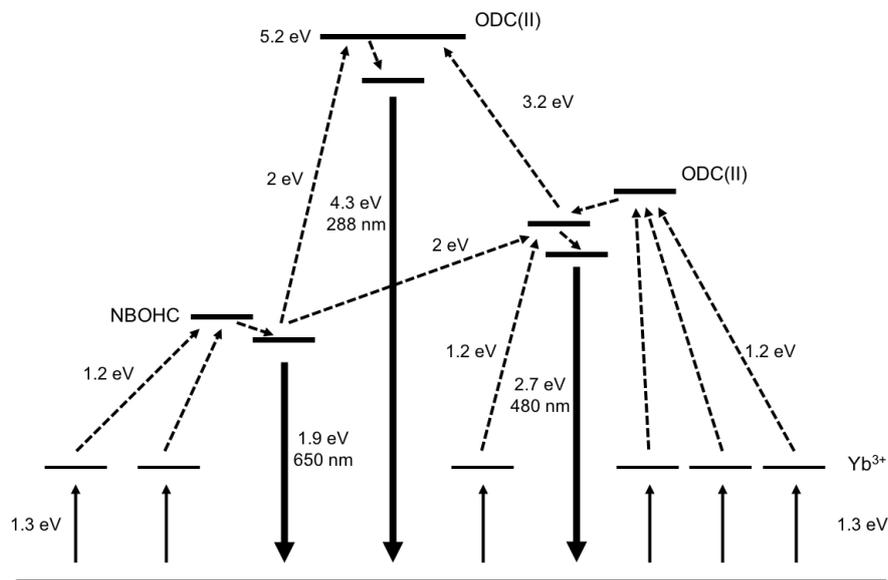


図 2.16 NBOHC や ODC を含めた励起過程に関わるエネルギー準位図

また、Yb³⁺添加アルミノケイ酸塩ファイバを 250 nm のパルスレーザーで照射した時の発光や吸収スペクトル変化についても調べられている[92]。この結果から ODC の発光や NBOHC の発光が観測されており、NBOHC 由来の 630 nm の発光強度が照射時間とともに増加する一方で ODC 由来の 488 nm の発光が減少することや、ODC から E' センターが形成されることが述べられた。また、ここでは[91]で述べられた Yb²⁺由来の 520 nm の発光も無視できないと言及されている。しかし、[91]はプリフォームの状態の評価しており、一方で[92]ではファイバに線引きした状態で評価している。そのため、[91]と異なる発光スペクトルになった原因として、線引き過程によって ODC が形成された事が原因ではないかと推察している[92]。

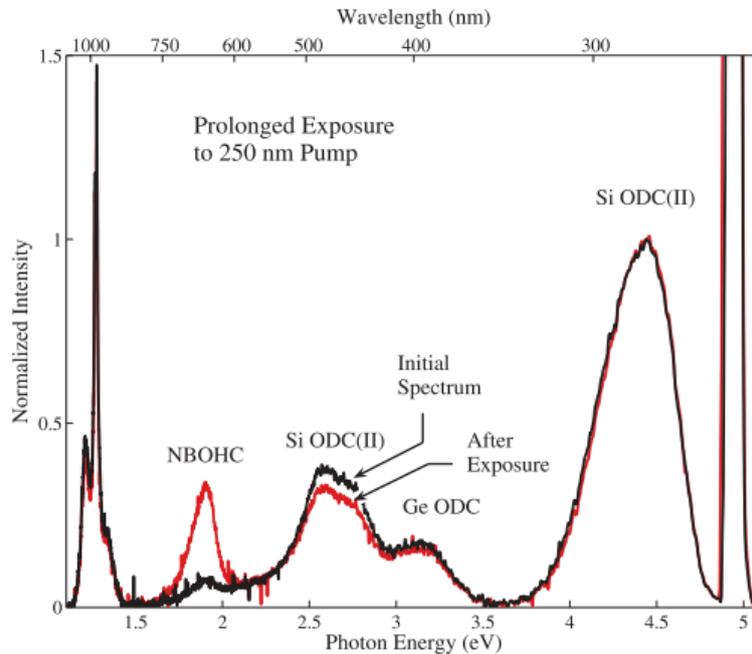


図 2.17 250 nm 照射時の発光スペクトル (黒: 250 nm 照射直後、赤: 70 分照射後)

2.7.1.3. Tm (不純物) によるフォトダークニング

ここでは、Tm の紫外光発生による Yb³⁺添加ファイバの PD について説明する。

[98]では、Yb 添加アルミノケイ酸塩ファイバを 976 nm で励起した場合の発光について調べており、図 2.18 の黒点の発光スペクトルが観測されたと報告している。赤色のスペクトルは Tm³⁺の添加濃度を 1000 倍以上大きくした時の発光スペクトルである。この結果から Tm³⁺特有の発光波長が観測されたため、Tm³⁺が PD に影響しているのではないかと考えられた。つまり、図 2.19 のように ESA (Excited state absorption) によって高いエネルギー準位に励起された Tm³⁺がホストガラスに作用することで PD が生じる可能性があると言及された。

近年、[99]によって 915 nm で励起した Yb 添加ダブルクラッドファイバの PD について報告され、Tm³⁺特有の 464 nm (¹G₄ → ³H₆)の発光が観測された。この結果からも、Yb³⁺の励起による Tm³⁺の ESA が生じている事がわかり、Tm³⁺の UV 発光準位への遷移が PD の原因になっている図 2.20 のようなモデルが考えられた[99]。AlOHC は Al-Oxygen hole center であり、アルミニウムと酸素の結合欠陥である[100]。

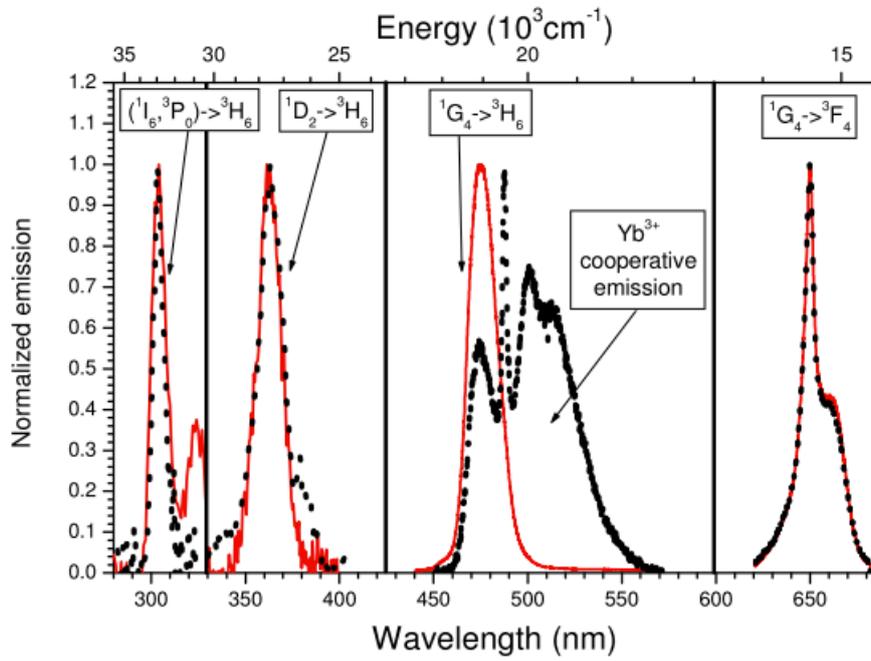


図 2.18 976 nm 励起時の Yb 添加ファイバからの発光スペクトル[98]

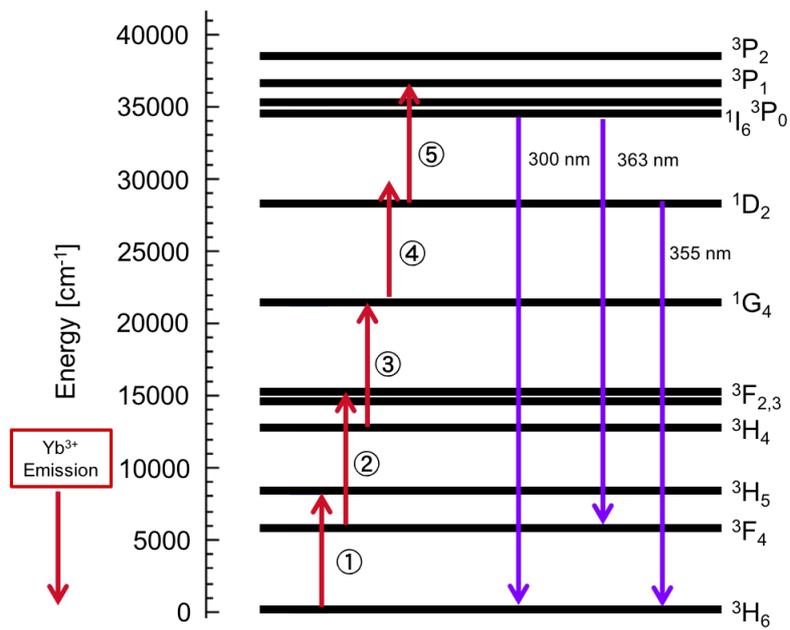


図 2.19 YbTm 添加サンプルのアップコンバージョン過程

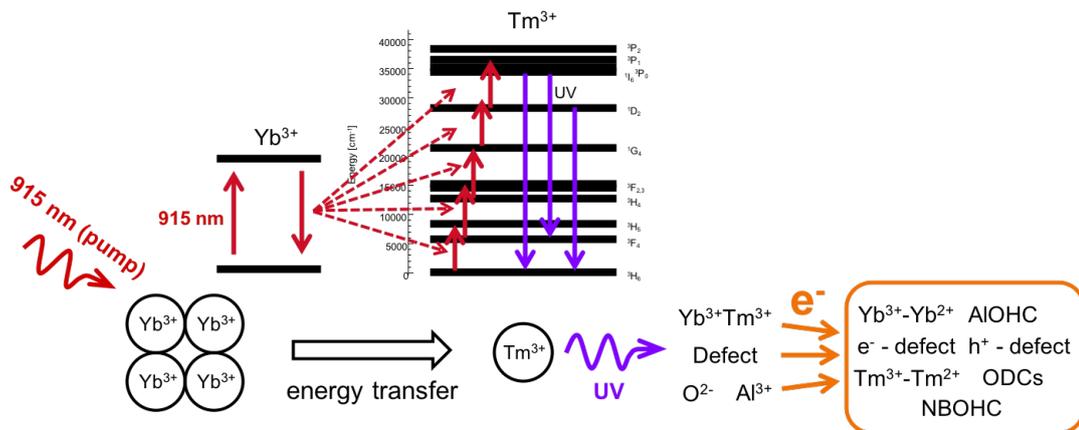


図 2.20 915 nm 励起 Yb 添加ファイバの Tm 由来のフォトダークニング過程

2.7.2. Yb³⁺添加ファイバのフォトダークニング抑制

次に、Yb³⁺添加ファイバの PD の抑制についてこれまでに報告されている実験結果をいくつか紹介する。

2.7.2.1. Yb³⁺添加ファイバのフォトブリーチング

Yb³⁺添加ファイバのフォトブリーチング (PB) についてこれまで報告されている結果についていくつか説明する。Yb³⁺添加ファイバのフォトブリーチングは 1 フォトン過程だと考えられている[101]。

[102]では、Yb 添加 LMA(large-mode-area)ダブルクラッドファイバを 355 nm のパルスレーザーで PB した時の結果について報告されている。ここでは、Nd:YVO₄ レーザーの 3 倍波 (5 kHz, 450 mW, 90 μJ) のレーザーで PB を行っている。その結果、PD によって生じた損失をほとんど取り除くことができるとわかった (図 2.21 a)。さらに、レーザー共振器で動作した時には PD していないファイバと同程度のスロープ効率を示すことがわかった (図 2.21 b)。

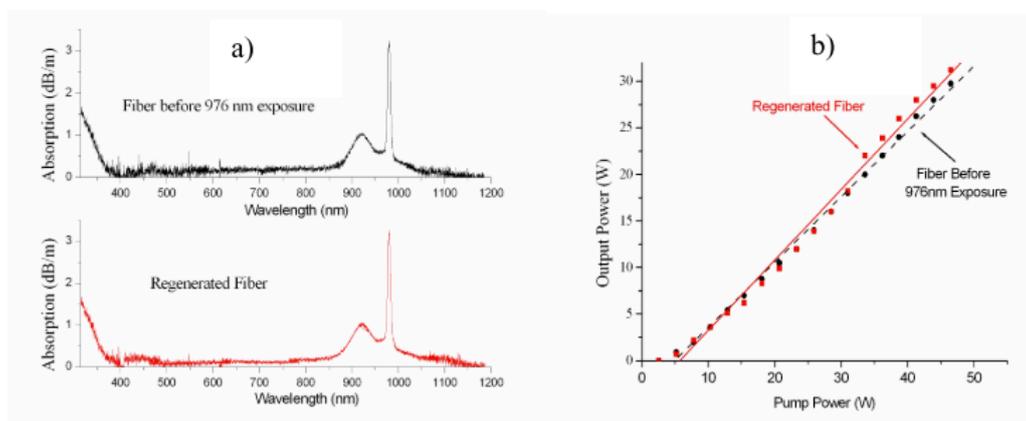


図 2.21 フォトダークニング前とフォトブリーチング後の
 a)吸収スペクトルと b)レーザー出力特性[102]

543 nm での PB も報告された[103]。[103]では、977 nm で励起したアルミノケイ酸塩ファイバの PD や PB について調べている。この報告では、PD によって可視から近赤外においては吸収が増える一方で、977 nm の吸収ピークは減少した(吸収が減った)。さらに、PD によって吸収が生じたファイバを 543 nm(1 mW) でブリーチングすると PD とは逆の現象がみられ、可視域の吸収は減少し 977 nm での吸収は増加した。これらの結果から、PD によって $\text{Yb}^{3+} \rightarrow \text{Yb}^{2+}$ の変換が行われ、PB によって $\text{Yb}^{2+} \rightarrow \text{Yb}^{3+}$ の変換が行われたと推察されている。

633 nm や 793 nm でも PB が行われているが、PB は不完全で PD によって生じた吸収が残ってしまう結果となり、フォトンエネルギーが不十分であることが理由として考えられた[104], [105]。405 nm による PB も調べられており、PB と同時に PD が生じると報告されている[106]。405 nm のみで励起した時に 532 nm の弱い発光も観測され、405 nm の 2 光子吸収によってカラーセンターが形成され PD が生じている可能性があるとして述べられている。また、532 nm での PB についても報告されており、励起していない新しい Yb/Al 添加ファイバを 532 nm で励起すると、PD によって生じる損失が新しいファイバよりも軽減されると報告されている[75]。この原因として、ファイバ製造時に生じた Yb^{2+} が 532 nm によって周囲のホールと再結合し、 $\text{Yb}^{2+} \rightarrow \text{Yb}^{3+}$ の変換が行われているだろうと述べられている。

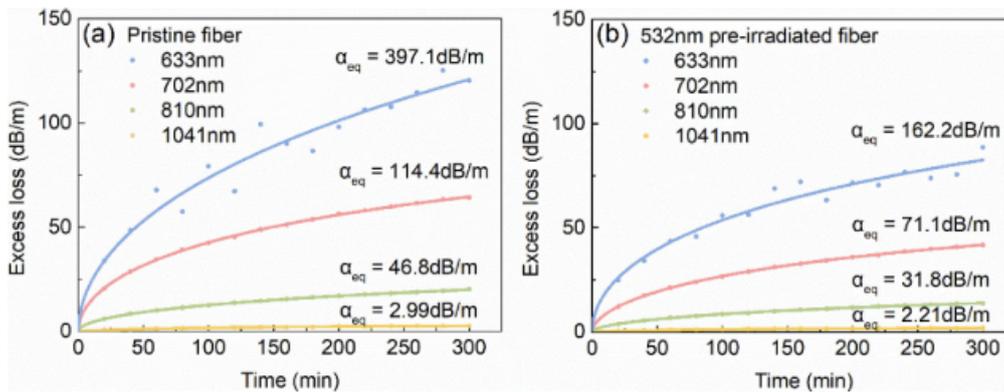


図 2.22 PD によって生じた損失の時間変化[75]
 (a) 新しいファイバ、(b) 532 nm で励起した後のファイバ

2.7.2.2. Yb³⁺添加ファイバのサーマルブリーチング

Yb³⁺添加ファイバのフォトダークニングやサーマルブリーチングについて報告されている論文の結果を交えて紹介する。

室温でフォトダークニングしたファイバの温度を変えると、フォトダークニングによって生じた損失に温度依存性が見られることが報告されている。図2.23はフォトダークニングしたファイバをサーマルブリーチングした時の損失スペクトル時間変化を示している。破線は 633 nm を示しており室温から 453 K に温度を上げると損失が増加している[107]。

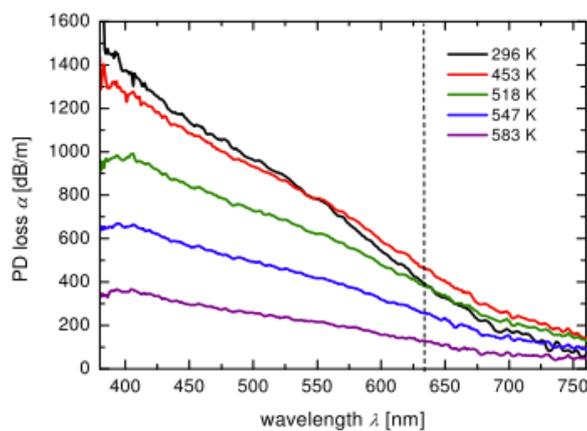


図 2.23 サーマルブリーチングによる損失スペクトル変化[107]

図 2.24 では 600 nm での損失の温度依存性を表しており 350°C程度までは温度を上げると損失が増加し (heat-induced absorption)、350°C以上の温度にするとサ

ーマルブリーチングの効果が始まり損失が取り除かれる事が報告されている [89]。

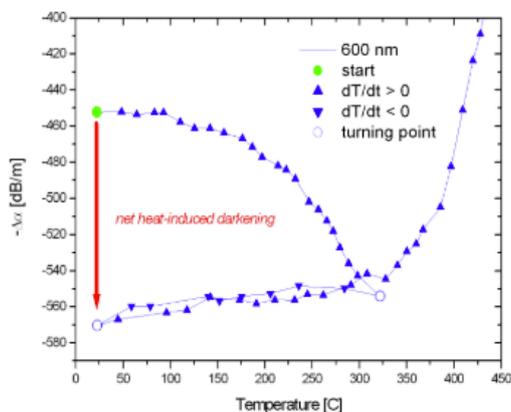


図 2.24 吸収係数 (600 nm) の温度依存性[89]

Martin らは PD による損失の時間変化の温度依存性を測定している[90]。975 nm でフォトダークニングさせた時の損失 (633 nm) の時間変化の測定結果が報告され (図 2.25)、温度が高くなるにつれて PD による損失が減少し、ダークニングレートが高くなることがわかっている。さらにストレッチドエクスponentialでフィッティングした時のフィッティングパラメータ β が温度上昇につれて 1 に近づくこともわかった。また、ここで β が添加濃度によって変化することも報告されている[90]。

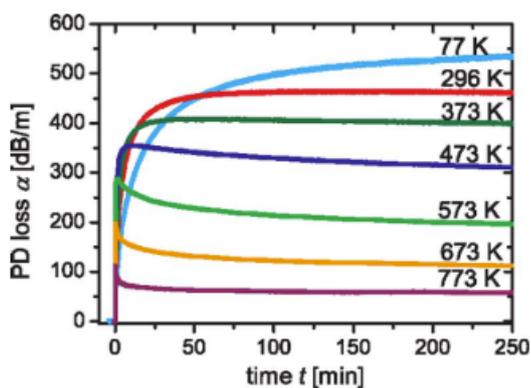


図 2.25 PD による損失の時間変化[90]

2.7.3. Tm³⁺添加ファイバのフォトダークニング

Tm³⁺添加ファイバのフォトダークニングについて紹介する。

1993年にBroerらによってTm³⁺添加アルミノケイ酸塩ファイバのフォトダークニングが報告された[108]。この報告では、600 nmをプローブ光としてフォトダークニングによって生じる透過パワーの変化を調べている。そして、プローブ光が1/eに減衰する時間を測定し、その結果が1064 nmの励起光パワーの4.7乗で変化することが実験的にわかった。この結果から5光子吸収過程がフォトダークニングに関与していると示唆された。3光子を吸収して¹G₄の準位に励起され、それから2光子分励起されると約35000 cm⁻¹以上のエネルギー準位に遷移される。このエネルギーはホストガラスの吸収が大きくなる波長帯に相当しており、Tm³⁺近傍の配位子からの電子の放出の可能性や、CTバンド由来の電荷移動によるカラーセンター形成の可能性が考えられた。¹G₄から¹D₂への遷移に相当するエネルギーギャップは約6000 cm⁻¹であり1064 nmにおける吸収断面積は小さいため、¹G₄から¹I₆への遷移は2光子吸収とTm³⁺イオンによるETU(Energy Transfer Upconversion)の2通りの遷移過程が考えられた。この2通りの過程は両方とも5光子吸収過程であり、ETUについては添加濃度の大きさに依存する。

次に、1995年にLaperleらによってTm³⁺添加ZBLANファイバを1.12 μmで励起した時のフォトダークニングレート(時定数の逆数)が励起パワーの4乗に比例することや、フォトダークニングのTm³⁺イオン濃度依存性が報告された[109]。これより4光子分の励起過程がZBLANガラスのフォトダークニングに関係する事がわかった。この結果は[108]の結果とは異なる結果であるが、¹D₂準位からのUV発光がZBLANファイバのカラーセンター形成の原因であると示唆された。

Qinらの報告[110]では1120 nmで励起したTm³⁺添加ZBLANファイバからの発光について調べられた。1120 nmでの励起時間の増加に対するTm³⁺の発光(647 nm, 784 nm)強度がほとんど変化しなかった事から、Tm³⁺添加ZBLANファイバのフォトダークニングについてはTm³⁺のイオン化が原因ではないと考えられた。しかし、ダークニングレートが励起光パワーの4乗に比例して変化したにも関わらず5光子吸収が必要な¹I₆からの290 nmの発光が観測された[111]。ダークニングレートが励起パワーの5乗に比例していないにも関わらず¹I₆からの発光を得るためには吸収飽和が生じる必要がある。Boothらは、¹D₂からの発光の励起パワー依存性を調べており、¹D₂からの発光が励起パワーの4乗に依らない事や、³H₄-³F_{2,3}や³F₄-¹G₄で飽和が起きていることから飽和によって必ずしも励起パワーの4乗に依存するとは限らないと述べている[112]。これらの結果か

ら、 Tm^{3+} の 1I_6 や 1D_2 からの UV 光発生がカラーセンターを形成し、フォトダークニングを引き起こしていると考えられている。また、フォトダークニングによって生じた吸収スペクトルをガウシアンフィッティングすることで、 ~ 300 nm、 ~ 500 nm、 ~ 830 nm を吸収中心波長に持つ損失が Pb^{2+} 、 Zr^{3+} 、 Pb^{3+} の結合欠陥によって生成されたカラーセンターに由来する、という結果も報告されている[113]。

Tm^{3+} によって生じるフォトダークニングは高いエネルギー準位に励起された Tm^{3+} イオンから放出される高エネルギーフォトンによって媒質の電子が放出しカラーセンターがガラス中に形成されることに由来すると考えられており、可視領域や紫外領域の光を吸収する[114]。Barber らの報告によるとフォトダークニングによる吸収の大きさは励起波長によって変化し、ダークニングしたファイバに低パワーの励起光 (波長 $1 \mu m$ 付近) を入射することで吸収が減る現象 (フォトブリーチング) がみられ、これらの結果からフォトダークニングとフォトブリーチングが同時に生じて平衡状態に落ち着くことが示された[111]。

Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバの PD と温度の関係についても Laperle らによって報告されている[115]。1112 nm で励起した時のダークニングによって生じた定常状態における損失(514 nm)と温度との関係を調べており、温度が上がるに従って損失が大きくなり約 410 K よりも高い温度になると温度によるブリーチング効果が見られる事が報告されている。この物理的な解釈は解明されていないが、410 K より大きくなるとアニーリング効果がダークニング効果を上回ったことが原因だと考えられた。また、温度が高くなるにつれて β が 1 に近づくことも報告された。

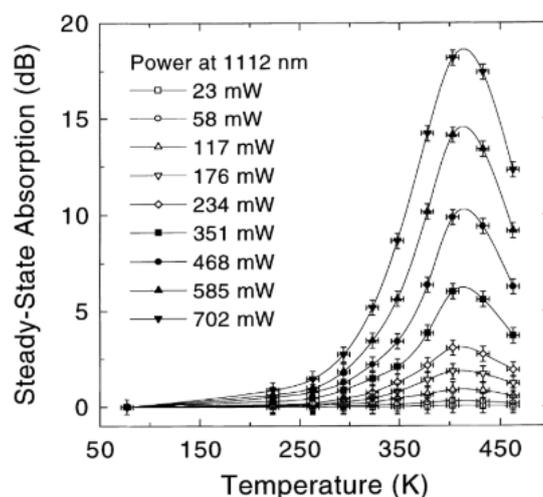


図 2.26 温度に対する定常状態での PD による損失 (514 nm) [115]

2.7.4. Tm³⁺添加ファイバのフォトダークニング抑制

Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバのフォトブリーチング効果は 488 nm や 514 nm で報告されている[113], [116]。[115]ではフォトダークニングしたファイバに 488 nm を入射し、PB による 514.5 nm の透過パワー時間変化を測定し、ストレッチドエクスポネンシャルでフィッティングしている。そして、実験的に以下のような関係があることを報告している。

$$\frac{1}{\tau} = kIC^m \quad (2.46)$$

k は比例定数、C は添加濃度、I は PD に用いた 488 nm の光強度、 $\frac{1}{\tau}$ はストレッチドエクスポネンシャルでフィッティングした時に得られるレートである。この実験では、NA が同じファイバでは β の値はどれもほぼ同一であり、ブリーチング光強度依存性や添加濃度依存性は示さなかった。

Faucher らは、514 nm でフォトブリーチングしながら 482 nm のファイバレーザーの出力特性を評価しており、出力動作と同時に PB を行うことで出力が向上されると報告しており、PB を同時に行い PD を抑制する事の有効性を示した[118]。

Tm³⁺添加シリカファイバに Ce と La を共添加する事で PD を抑制する手法が実証されている[117], [118]。Ce はシリカガラス中では Ce⁴⁺で存在し紫外光を吸収して Ce³⁺になるが、可視光領域で透明でありカラーセンターにならない事やそれぞれの Ce が Tm³⁺からの紫外光を吸収する事、そして Ce⁴⁺が放出された電子をトラップする事によって PD が抑制されていると考えられている[117], [118]。

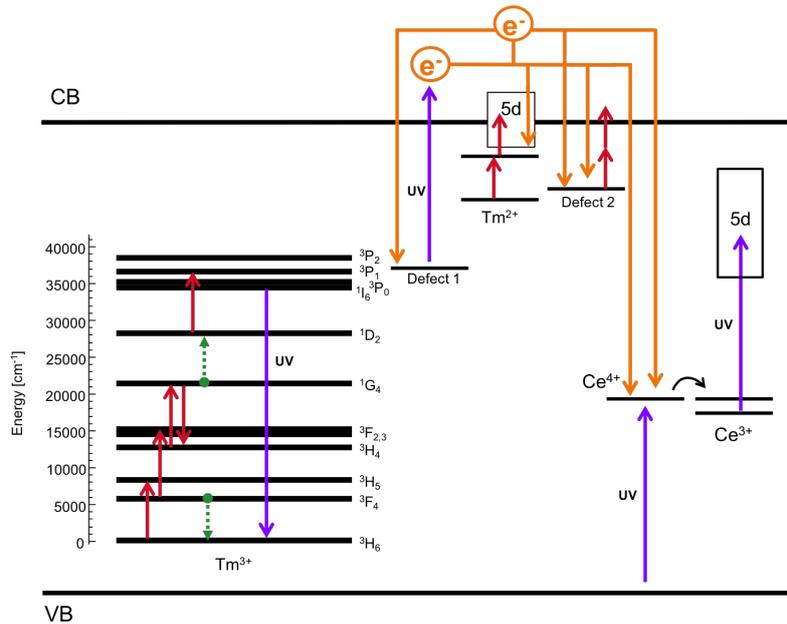


図 2.27 Tm/Ce 添加シリカファイバの PD プロセス

図 2.27 では以下のようなモデルを表している。Tm³⁺イオンの ESA による UV によって AIOHC や ODC から電子が放出され欠陥などにトラップされる（価電子帯に電子が遷移）、または電子が Tm³⁺にトラップされて Tm²⁺に変化し、カラーセンターが形成される。Tm²⁺は励起光（1.07 μm）の 2 光子吸収によってイオン化され電子を放出し Tm³⁺に戻る。価電子帯の電子は Ce⁴⁺がトラップすることによりカラーセンターの形成が抑制される。さらに Ce⁴⁺や Ce³⁺は紫外光を吸収するためカラーセンター形成に使われる紫外光の光子数が減少する。これらの効果から PD が抑制される。

1 μm 帯で励起した時に生じる Tm³⁺由来のフォトダークニング抑制だけでなく、Ce の共添加は放射線被曝による損失発生（カラーセンター生成による損失）の抑制にも用いられる[118]。また水素や重水素を封入することで、被曝によって Tm³⁺添加シリカファイバ内にガンマ線によって生じた損失が抑制できることもわかっている[119]。

3. Tm³⁺:ZBLAN ファイバを用いた光格子用レーザーの開発

本章では本研究で開発した Sr 光格子時計のための光格子用レーザーの実験についてまとめる。現在 Sr 光格子時計で使用されている光格子用レーザーはチタンサファイアレーザーと半導体 MOPA であり、一般的に以下のような特徴を持っている。このように、チタンサファイアレーザーは光学的に優れているが一方で衛星搭載などの目的にとって使用電力や大きさが問題となる。半導体 MOPA では使用電力と大きさにおいて優れた特徴を持つがノイズが大きく光学的特性に欠点がある。本研究では可搬的もしくは衛星搭載向けの次世代 Sr 光格子時計に適した光格子用レーザーの開発を目指した。

表 3.1 他の光格子用レーザー（チタンサファイアレーザー、半導体 MOPA）の特徴

	チタンサファイアレーザー	半導体 MOPA
出力	> 2 W[120]	2 W[121]
SNR(signal-to-noise ratio)	< 89 dB[121]	~ 40 dB[121]
ビーム品質	$M^2 < 1.1$ [120]	$M^2 < 2$ [122]
電力変換効率	~0.3%* ¹	~ 5%* ²
システム	大型	小型

*1: 励起パワー10 W(Verdi(G10), coherent, 消費電力:700 W)で 2W 出力する事から算出 [121], [123]、チラーは含まれていない

*2: BoosTA pro の消費電力:40 W から算出[121], [122]

ここで再度 Sr 光格子時計用光格子用レーザーの要求値を示す。序章でも示したが、これまでに Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバを用いたシステムによって光格子用レーザーの光学的要求値を満たす事が可能であると示された。しかし、出力の安定性に大きな問題があり実用可能な光源は実現されていない。本研究ではこの問題の原因をつきとめ、それがフォトダークニングであると明らかにした。本章ではまず基本的なシステム構成について説明し、次にマスターレーザーの特性について示す。そして次にフォトダークニングと 532 nm によるフォトブリーチングの実証結果について記した。そのあとの構成としてはフォトダークニン

グの抑制に着目し高出力化や高効率化、そしてカスケードアンプによる低ノイズや安定動作を実証したので詳細について記した。本章の最後では信号光のフォトブリーチングについて詳しく調べその内容について記述した。

表 3.2 Sr 光格子時計用光格子用レーザー要求値

波長	813.42 nm
出力	> 1 W
周波数線幅	< 1 MHz
長期安定動作、高ビーム品質、高 SNR、小型、堅牢	

3.1. 基本的な実験構成

本節では基本的な構成について記述する。基本的な構成は図 3.1 に示すように後方励起を採用している。マスターレーザーに ECLD を使用し、 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを後方から Yb^{3+} ファイバレーザー (YbFL) でコア励起している。ECLD の波長は 813.42 nm、出力 70 mW、周波数線幅は 200 kHz 以下である。励起波長は 785 nm と 1064 nm の 2 通り考えられる。813 nm では再吸収が強いためクラッド励起では励起強度が不十分であり増幅が難しいため、コア励起による高強度励起が必要である。その点、785 nm 励起の場合は高出力なマルチモードファイバ出力の LD を用いたクラッド励起手法が広く用いられているが高輝度な光源は無い。一方で 1064 nm の場合は Yb^{3+} ファイバレーザーという高輝度なレーザーで励起できる。Sr 光格子時計の光格子用レーザーには 1 W 以上の出力が必要であり、LD では輝度が不十分であるため Yb^{3+} ファイバレーザーを励起レーザーに用いた。基本的な構成は、マスターレーザー (ECLD) の光を YbFL で後方コア励起された Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバによって増幅する構成である (図 3.1)。

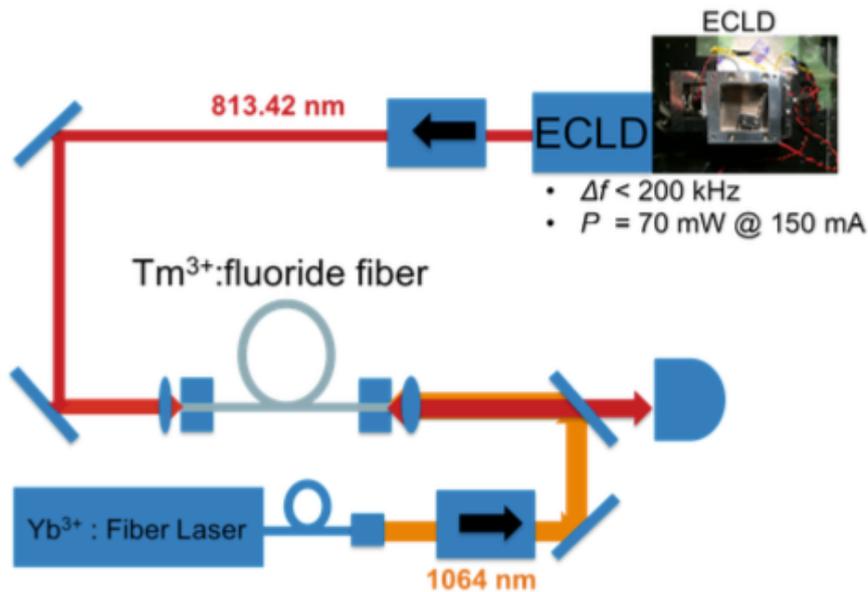


図 3.1 ファイバ MOPA の基本構成

3.1.1. 外部共振器型半導体レーザー (ECLD)

マスターレーザーとして用いた ECLD(External Cavity Laser Diode)について説明する。

ECLD は小型で狭線幅なレーザーとして知られている。近年では堅牢にデザインすることで 10 kHz 以下の周波数線幅が実現されており、波長掃引も可能であるため分光や他レーザーの評価にも使用することができる[124]。810 nm 帯において狭線幅で波長可変性に優れた安定な光源は ECLD しか無いため ECLD をマスターレーザーとした。

片側が AR(Anti Reflection)コーティングされた半導体レーザーと外部鏡によって共振器を構成することで共振器長が長くなり狭線幅化が可能になる。しかし、FSR(Free Spectral Range)が小さくなるため多くの縦モードが存在する。そこで単一縦モードで出力するために回折格子やフィルターが用いられる。フィルターを用いた場合は回折格子の場合と比べて周波数掃引帯域が小さいが、出射光のポインティングの安定性が高いという利点がある。

そこで、図 3.2 のような ECLD を作製した。LD(Laser Diode)チップは Eagleyard 社の片側が AR コーティングされており、780 nm から 850nm までチューニングできる。コリメートレンズは Thorlabs 社製のレンズ (LD に近い方から f=4.51 mm、f=18.4 mm、f=11.0 mm) を用いた。円筒型の piezo 素子には部分反射ミラ

ー (OC : Output Coupler、シグマ光機社製) がエポキシ樹脂で接着されており、800 nm で 20% の反射率を持つ。干渉フィルターは Radiant Dyes 社製のフィルターを用いており、 6° で中心透過波長が 817 nm であり、0.4 nm の半値全幅(FWHM: Full Width at Half Maximum)をもつ。傾きを変えることで中心透過波長を変えることができるので、813 nm で単一縦モードを出力できるように傾きを調整した。温度と電流値とピエゾ素子の電圧によって波長をチューニングできる。図 3.3 に ECLD の PI 特性を示す。180 mA で 95 mW 出力できるが高負荷で使用すると壊れる危険性が高くなるため基本的に 100 mA で使用した。

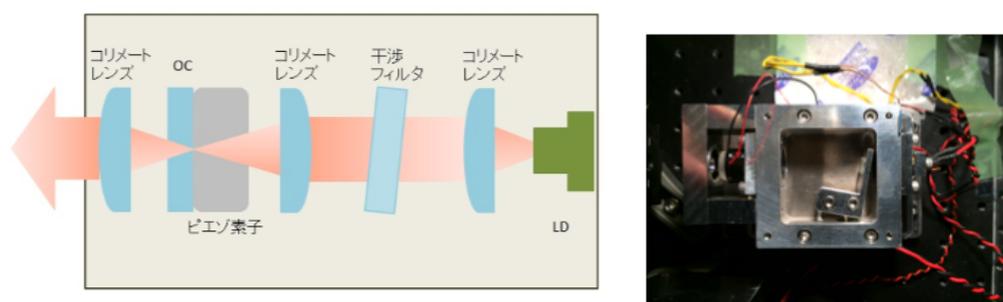


図 3.2 ECLD の構成の概略図 (左) と写真 (右)

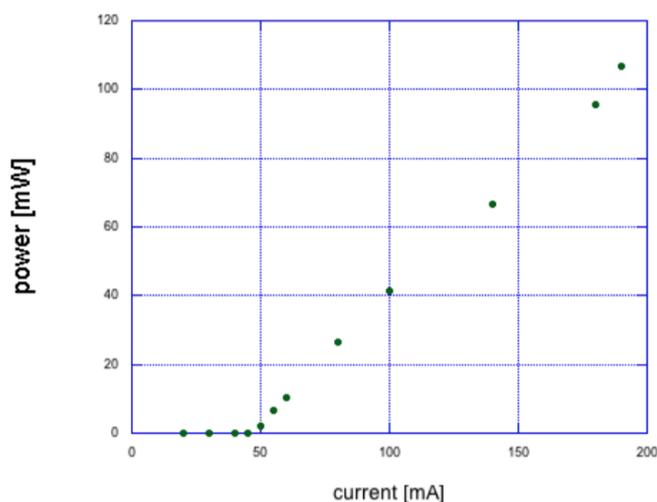


図 3.3 ECLD の PI 特性

フィルターの角度を調整しモードホップしない波長帯域内で 813.42 nm を出力した。ECLD (印加電流:100 mA) の温度を変えながらから出力される波長を波長計 (671B-NIR, Bristol Instruments, Inc.) で測定した (図 3.4)。プロットがとびとびになっているのは波長計の分解能に由来する。図 3.4 の横軸は ECLD に取り付けられているサーミスタの抵抗値、縦軸は波長計で表示された波長である。こ

れよりモードホップしない波長領域内で 813.42 nm を出力できることを確認される。そして 813.42 nm が出力される温度に温度制御された ECLD を用いて増幅実験を行なった。

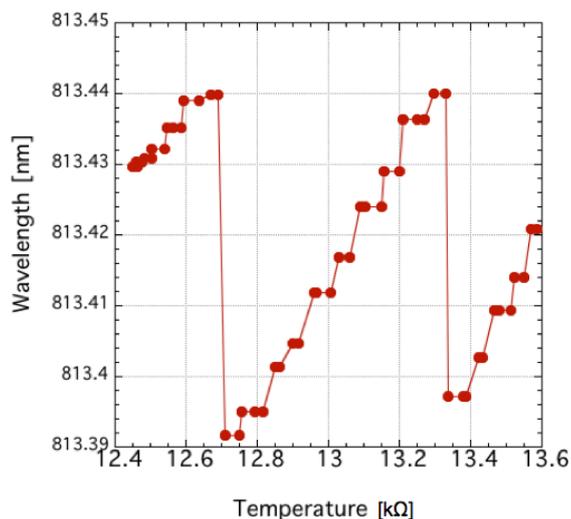


図 3.4 温度に対する出力される波長 (100 mA 時)

3.2. フォトダークニングとフォトブリーチング

出力の不安定性や再現性にとって問題となるフォトダークニングについて記す。

2.7 節で説明したように、 Tm^{3+} 添加ファイバを 1064 nm など 1 μm 帯で励起するとフォトダークニングが生じる事がわかっている。本研究の場合でも 1064 nm で励起することにより、フォトダークニングによって 813 nm の出力が減少する事がわかった。また 532 nm の光をファイバに入射することでフォトダークニングによって生じた損失が回復するフォトブリーチングの効果が得られた。本節では、これらについて調べた実験とその結果について記す。

3.2.1. 増幅出力 (813 nm) の時間変化

まず、励起直後の 813 nm の増幅パワー時間変化を測定した。図 3.1 と同様な実験図でフォトダークニングによる 813 nm の損失の存在を調べた (図 3.5)。

Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバ (ファイバーラボ (株)) の添加濃度は 15000 ppm、コア径 4.5 μm、NA=0.12、長さ 45 cm のものを用いた。励起レーザーは 1050 nm の Yb³⁺:ファイバレーザーを用いた。そして、Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバの励起光入射側の 8°研磨されフェルルはジグで固定されている。ECLD の光の入射パワーは約 10 mW である。Yb ファイバレーザーで励起した直後の増幅出力の時間変化を図 3.6 に示す。図 3.6 の縦軸は増幅出力の減少が始まった時の出力値で規格化されている。横軸は時間である。図 3.6 (左) のようにフォトダークニングによって 813 nm の増幅出力が減少している事が確認できた。

次にこれまで報告されているフォトブリーチングについての論文を参考に [113], [116]、532 nm の光によるフォトブリーチングを試みた。使用した Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバはフォトダークニングしたファイバを使った。532 nm のレーザーは昭和オプトロニクス社製のダイオード励起固体 (DPSS: Diode Pumped Solid State) レーザー(JUNO)を用いた。増幅動作中に 532 nm の光を入射し 813 nm の増幅出力が回復するかどうかを調べた。図 3.6 (右) の縦軸は 532 nm の光を入射 (入射パワー約 1 mW) した時の増幅出力 (813 nm) で規格化されている。そして、532 nm の光を入射する事によって増幅出力 (813 nm) が回復した (図 3.6 (右))。これより、532 nm の光によって 813 nm におけるフォトダークニングによる損失が除去される事がわかった。この実験より、これまで課題となっていた出力の不安定性や再現性の問題に対する原因が Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバのフォトダークニングにあると明らかになった。

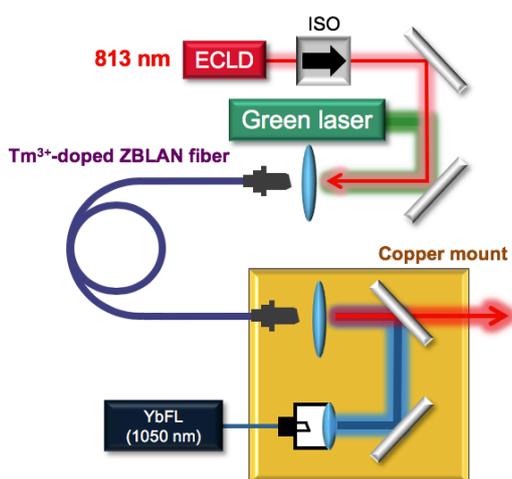


図 3.5 フォトブリーチングしながら増幅実験した時の実験系概略図

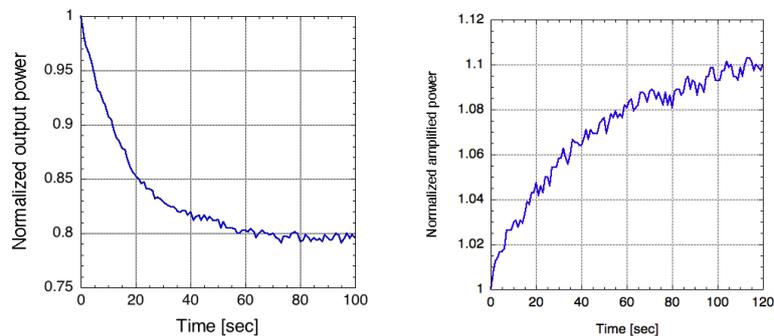


図 3.6 フォトダークニングによる増幅出力の減少（左）とフォトブリーチングによる増幅出力の上昇

この実験から、高い出力で安定に動作させるためにはフォトダークニングの抑制が必須であると考えた。そして、フォトダークニングの抑制には 532 nm によるフォトブリーチングが有効であるとわかった。

3.2.2. 吸収スペクトル変化

次に、フォトブリーチングやフォトダークニングによる吸収スペクトルの変化を測定した。

白色光を Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバに入射して、その透過光を光スペクトラムアナライザ(AQ6374)で測定した。白色光には SC (Super Continuum) 光源(SC-5, YSL photonics)を用いた。SC 光はパワーが強いのでそのまま Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバに入射するとダークニングやブリーチングが起きてしまう。そのため白色光の入射パワーを 1 mW 以下に減衰して使用した。

増幅実験系は図 3.5 と同様な構成である。この実験で使用した Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバはコア径 4.8 μm 、長さ 300 cm、添加濃度 5000 ppm である。SC 光透過スペクトルは、SC 光源と Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバをアダプタで結合し Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバから出射される SC 光の透過光を光スペクトラムアナライザで測定することで得た。まず、フォトダークニングしていないフレッシュな Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバの透過光スペクトルを測定した(図 3.7 青)。図 3.7 の黒色のスペクトルは入射される SC 光のスペクトルを測定したものであり、十分に小さい出力の白色光である事がわかる。次に増幅実験後の SC 光透過スペク

トルを測定した。励起光源には 1220 nm と 1050 nm のファイバレーザーを使用し 2 波長励起を行った。信号光 (813 nm) の入射パワーは約 20 mW、そして 10 W の励起パワー (4 W: 1220 nm、6 W: 1050 nm) で 2 分間増幅実験を行い、SC 光透過スペクトルを測定した (図 3.7 水色)。フォトダークニング後の透過光スペクトル変化より可視領域で損失が増加していることがわかる。これはカラーセンター特有の損失として知られており、フォトダークニングによって損失ができていたと確認できた。しかし、一般的には短波長になるにつれて損失が大きくなっていくはずだが、530~540 nm における損失だけ小さくなっている。この原因は 1060 nm ~ 1070 nm の SC 光のゴースト (2 次回折光) だと考えられる。最後に 532 nm でフォトブリーチングを行った後の吸収スペクトル変化を測定した。532 nm の光 (約 150 mW) を信号光側から 2 分間入射した後の SC 光透過スペクトルを図 3.7 (赤色) に示す。これより、532 nm の光によって PD による損失が減少しフォトブリーチングが行われ事がスペクトル上でも確認できた。この結果から、532 nm のフォトブリーチングが PD による損失抑制に効果的であり 813 nm の安定な増幅動作に必須であるとわかった。

近赤外域の損失については PD する前の状態にほとんど戻す事ができたが、短い波長帯では損失が残ってしまう結果となった。この結果から、532 nm のフォトンエネルギーでは短波長に吸収を持つカラーセンター (電子-ホール対) を再結合できなかつたため、吸収が残ってしまったと考えられる。フォトブリーチング効果はフォトンエネルギーに依存することが知られているため[125]、短波長の吸収を取り除くためにはより高いフォトンエネルギーのレーザー光を用いる必要があると考えられる。

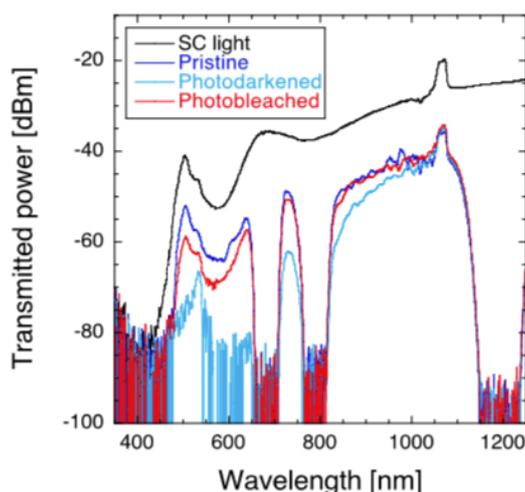


図 3.7 SC 光の透過スペクトル (黒:SC 光、青:ダークニング前、水色:ダークニング後、赤:フォトブリーチング後)

3.3. Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバ増幅器の増幅出力のシミュレーション

本研究では低添加濃度ファイバを用いた 2 波長励起 (1220 nm+ 1050 nm) と高濃度添加ファイバを用いた 1 波長励起 (1050 nm) の増幅実験を行っており、それぞれの手法の場合でシミュレーションを行なった。まず、低添加濃度ファイバを用いた 2 波長励起について説明する。

3.3.1. 低添加濃度ファイバを用いた 2 波長励起のシミュレーション

低添加濃度ファイバ (5000 ppm) を用いた 2 波長励起の増幅出力シミュレーションで用いたレート方程式や係数について説明する。ここで考慮した準位を図 3.8 に示す。準位図については[126]を参考にした。 3H_5 - 3F_4 間のエネルギー差は大変小さくほとんどが熱緩和して 3F_4 の準位に遷移するためここでの遷移レートは無視してまとめて N_1 として考えた。同様に 3F_2 , 3F_3 , 3H_4 についてもまとめて N_2 とした。

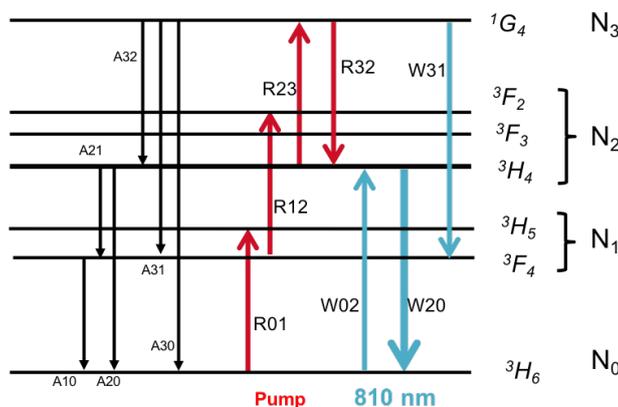


図 3.8 低添加濃度ファイバを用いた 2 波長励起増幅出力シミュレーションの準位図

この準位図からレート方程式は以下のようになる。

$$\frac{dN_1}{dt} = R_{01}N_0 - (R_{12} + A_{10})N_1 + A_{21}N_2 + (A_{31} + W_{31})N_3 \quad (3.1)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = W_{02}N_0 + R_{12}N_1 - (R_{23}W_{20}A_{20}A_{21})N_2 + (A_{32} + R_{32})N_3 \quad (3.2)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = R_{23}N_2 - (W_{31} + R_{32} + A_{30} + A_{31} + A_{32})N_3 \quad (3.3)$$

$$N_0 + N_1 + N_2 + N_3 = 1 \quad (3.4)$$

$\frac{dN_i}{dt} = 0$ (i は 1~3 の番号) となる定常状態を考え、(3.1)式から(3.4)式の連立方程式を解くことによってそれぞれの準位 ($N_0 \sim N_3$) の原子数密度比が計算できる。

そして、連立方程式を解くことによって求められたそれぞれの準位の原子数を用いて以下の伝搬方程式により励起光と信号光の伝搬中のパワー変化がわかる。本実験の後方励起の場合、図 3.8 の準位図をもとに以下のようにかける。励起光の伝搬方程式は 1220 nm については (3.5) 式、1050 nm については (3.6) 式に示す。使用した値については表 3.3 に示す。

$$\frac{dl_{p12}}{dz} = \Gamma_{p12(1220nm)}(\sigma_{p01(1220nm)}N_0 + \sigma_{p12(1220nm)}N_1 + \sigma_{p23(1220nm)}N_2 + \sigma_{p45(1220nm)}N_4 - \sigma_{p32(1220nm)}N_3)I_{p12} + \alpha_{p12}I_{p12} \quad (3.5)$$

$$\frac{dl_{p10}}{dz} = \Gamma_{p10(1050nm)}(\sigma_{p01(1050nm)}N_0 + \sigma_{p12(1050nm)}N_1 + \sigma_{p23(1050nm)}N_2 + \sigma_{p45(1050nm)}N_4 - \sigma_{p32(1050nm)}N_3)I_{p10} + \alpha_{p10}I_{p10} \quad (3.6)$$

$$\frac{dl_s}{dz} = \Gamma_s(\sigma_{s20}N_2 + \sigma_{s31}N_3 - \sigma_{s02}N_1)I_s - \alpha_s I_s \quad (3.7)$$

ここで、 Γ は以下の式で導出されるオーバーラップファクターである。

$$\Gamma = 1 - e^{-\frac{2b^2}{w_0^2}} \quad (3.8)$$

b はイオンドープ半径、 w_0 はモードフィールド半径、 a はコア直径である。

$$w_0 = a \left(0.761 + \frac{1.237}{V^{1.5}} + \frac{1.429}{V^6} \right) \quad (3.9)$$

表 3.3 数値計算で使した値 (低添加濃度ファイバ2 波長励起)

a (コア径)	4.5 μm	NA	0.12
b (ドーパント半径)	4.5 μm	C (/cm ³)	9.4 $\times 10^{19}$ (5000 ppm)
α (線形損失)	0.3		
	($\times 10^{-27}$ m ²)		($\times 10^{-27}$ m ²)
$\sigma_{01(1220\text{ nm})}$	400[127]	$\sigma_{01(1050\text{ nm})}$	1.36[128]
$\sigma_{12(1220\text{ nm})}$	0.05[127]	$\sigma_{12(1050\text{ nm})}$	100[128]
$\sigma_{23(1220\text{ nm})}$	40[127]	$\sigma_{23(1050\text{ nm})}$	4.2[128]
$\sigma_{32(1220\text{ nm})}$	80[127]	$\sigma_{32(1050\text{ nm})}$	0.00623[126]
			(s ⁻¹)
		A10	112[126]
		A20	557[126]
		A21	91[126]
		A30	590[126]
		A31	476[126]
		A32	158[126]

数値計算には数値計算ソフト Matlab を使した。

微分方程式を含めたこれらの境界条件を解くために狙い撃ち法 (Shooting method) を用いた。Shooting method のアルゴリズムを以下の図に示す。

このアルゴリズムを用いた数値計算により境界条件 (信号光や励起光の入射パワー) を満たす信号光の増幅出力を求めた。計算に用いた値は以下の表にまとめた。1220 nm の吸収断面積や放出断面積については[127]の図から引用した。

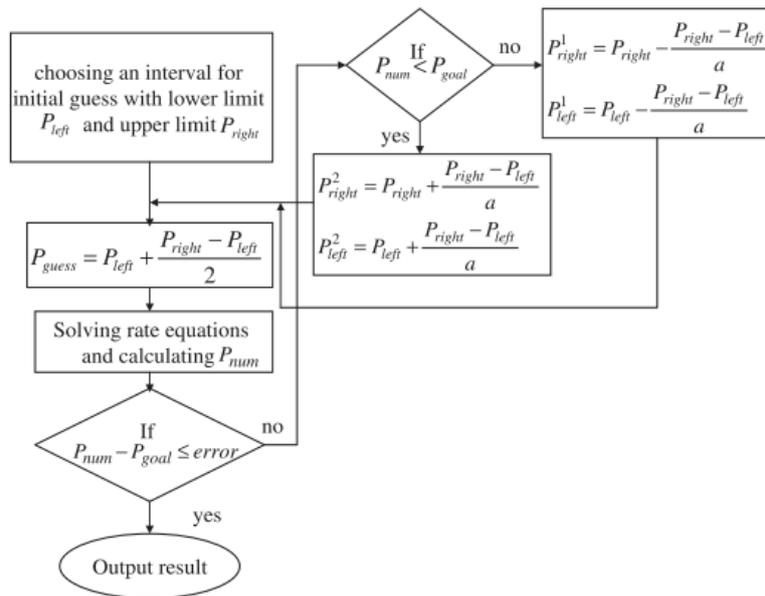


図 3.9 Shooting method のフローチャート[129]

3.3.2. 高添加濃度ファイバを用いた 1 波長励起のシミュレーション

ン

次に、高添加濃度ファイバを用いた 1 波長励起の場合のシミュレーションについて説明する。添加濃度が高い場合はエネルギー移動による遷移が大きくなる。そのため、以下の図 3.10 に示すような準位図を考慮した。ここでも、準位図については[126]を参考にした。

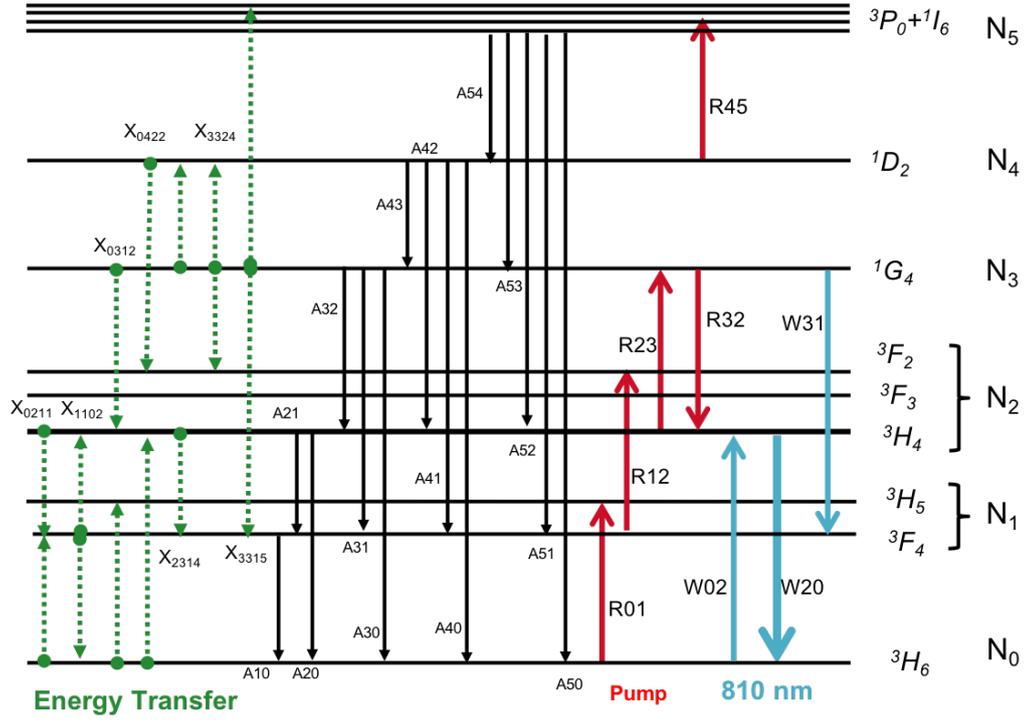


図 3.10 1 μm 帯で励起した場合の Tm^{3+} エネルギー遷移図

この準位図から以下のようなレート方程式が成り立つ。

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} = & R_{01}N_0 - (R_{12} + A_{10})N_1 + A_{21}N_2 + (A_{31} + W_{31})N_3 + A_{41}N_4 + A_{51}N_5 \\ & + X_{0312}CN_0N_3 + 2X_{0211}CN_0N_2 + X_{3315}CN_3^2 - 2X_{1102}CN_1^2 + X_{2314}CN_2N_3 \end{aligned} \quad (3.10)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_2}{dt} = & W_{02}N_0 + R_{12}N_1 - (R_{23}W_{20}A_{20}A_{21})N_2 + (A_{32} + R_{32})N_3 + A_{42}N_4 \\ & + A_{52}N_5 - X_{0211}CN_0N_2 + X_{0312}CN_0N_3 + 2X_{0422}CN_0N_4 \\ & + X_{3324}CN_3^2 + X_{1102}CN_1^2 - X_{2314}CN_2N_3 \end{aligned} \quad (3.11)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_3}{dt} = & R_{23}N_2 - (W_{31} + R_{32} + A_{30} + A_{31} + A_{32})N_3 + A_{43}N_4 + A_{53}N_5 \\ & - X_{0312}CN_0N_3 - 2X_{3324}CN_3^2 - 2X_{3315}CN_3^2 - X_{2314}CN_2N_3 \end{aligned} \quad (3.12)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_4}{dt} = & -(A_{40} + A_{41} + A_{42} + A_{43})N_4 + A_{54}N_5 - X_{3324}CN_0N_4 \\ & + X_{3324}CN_3^2 + X_{2314}CN_2N_3 \end{aligned} \quad (3.13)$$

$$\frac{dN_5}{dt} = R_{45}N_4 - (A_{50} + A_{51} + A_{52} + A_{53} + A_{54})N_5 + X_{3315}CN_3^2 \quad (3.14)$$

$$N_0 + N_1 + N_2 + N_3 + N_4 + N_5 = 1 \quad (3.15)$$

$\frac{dN_i}{dt} = 0$ (i は 1~5 の番号) となる定常状態を考え、(3.10)式から(3.15)式の連立非線形方程式を解くことによってそれぞれの準位 ($N_0 \sim N_5$) の原子数密度比が計算できる。

そして、非線形連立方程式を解くことによって求められたそれぞれの準位の原子数を用いて以下の伝搬方程式により励起光と信号光の伝搬中のパワー変化がわかる。本実験の後方励起の場合、図 3.10 の準位図をもとに以下のようにかける。

$$\frac{dI_p}{dz} = \Gamma_p(\sigma_{p01}N_0 + \sigma_{p12}N_1 + \sigma_{p23}N_2 + \sigma_{p45}N_4 - \sigma_{p32}N_3)I_p + \alpha_p I_p \quad (3.16)$$

$$\frac{dI_s}{dz} = \Gamma_s(\sigma_{s20}N_2 + \sigma_{s31}N_3 - \sigma_{s02}N_1)I_s - \alpha_s I_s \quad (3.17)$$

数値計算には数値計算ソフト Matlab を使用し、非線形連立方程式は fsolve というソルバーを用いた。fsolve は要素の 2 乗和を最小にするアルゴリズム (信頼領域法) を用いたソルバーである。そして、境界条件を解くために 2 波長励起と同様に狙い撃ち法 (Shooting method) を用いた (図 3.9)。計算に用いた値は以下の表にまとめた。

表 3.4 数値計算で使した値 (高添加濃度ファイバ 1 波長励起)

a (コア径)	4.5 μm	NA	0.12
b (ドーパント半径)	4.5 μm	C (/cm ³)	2.8×10^{20} (15000 ppm)
α (線形損失)	0.03		
	($\times 10^{-27}$ m ²)		($\times 10^{-27}$ m ²)
$\sigma_{01(1220 \text{ nm})}$	400[127]	$\sigma_{01(1050 \text{ nm})}$	1.36[128]
$\sigma_{12(1220 \text{ nm})}$	0.05[127]	$\sigma_{12(1050 \text{ nm})}$	100[128]
$\sigma_{23(1220 \text{ nm})}$	40[127]	$\sigma_{23(1050 \text{ nm})}$	4.2[128]
$\sigma_{32(1220 \text{ nm})}$	80[127]	$\sigma_{32(1050 \text{ nm})}$	0.00623[126]
		$\sigma_{45(1050 \text{ nm})}$	183[130]
	($\times 10^{-25}$ m ³ s ⁻¹)		(s ⁻¹)
X0211	300[131]	A10	112[126]
X0312	80[126]	A20	557[126]
X0422	259[126]	A21	91[126]
X1102	6[126]	A30	590[126]

X2314	480[126]	A31	476[126]
X3315	95[126]	A32	158[126]
X3324	70[126]	A40	6794[126]
		A41	8601[126]
		A42	2261[126]
		A43	106[126]
		A50	877[126]
		A51	5468[126]
		A52	2007[126]
		A53	1422[126]
		A54	40[126]

3.4. フォトブリーチングを用いたファイバ MOPA の高 出力化

1 W 以上のパワーを安定に再現性良く出力できる光格子用レーザーを開発するため、フォトブリーチングを同時に行いながら増幅動作する実験を行なった。フォトダークニングが問題となったことから 2 通りの添加濃度で実験を行いその結果を比較した。添加濃度 5000 ppm と 15000 ppm のファイバをそれぞれ用いた。それぞれ一長一短がある。5000 ppm の場合は添加濃度が比較的低いため Tm^{3+} 間のエネルギー移動率が小さく、その効果による ESA が抑制される一方で励起のアシスト効果が小さくなる。一方で高い添加濃度の場合はエネルギー移動による ESA や励起アシスト効果が比較的大きくなる。 Tm^{3+} 添加ファイバの場合は高い準位への ESA がフォトダークニングになることがわかっているため低添加濃度のファイバの方がフォトダークニングの影響が小さくなる。表にまとめると以下のような特性の違いがある。

表 3.5 添加濃度の違いによる PD と励起アシスト

	フォトダークニング	励起アシスト(${}^3H_6 \rightarrow {}^3F_4$)
低添加濃度	小さい	小さい
高添加濃度	大きい	大きい

低添加濃度のファイバを用いた実験では 1220 nm と 1050 nm のファイバレーザーを用いた 2 波長励起を行なった。一方、高添加濃度のファイバの場合は 1050 nm のファイバレーザーによる 1 波長励起を行なった。そして、それぞれフォトブリーチング(532 nm)を同時に行なったときの増幅出力特性を調べた。本節ではそれらの結果を踏まえ、Sr 光格子時計用光格子用レーザーの開発に適した添加濃度の決定を行なった。

3.4.1. 低添加濃度ファイバ MOPA (2 波長励起)

低添加濃度ファイバを用いた MOPA の増幅特性について記述する。実験概略図を以下に示す。

構成はこれまでと同様にファイバレーザーによって後方からコア励起されることで増幅されたマスターレーザー(ECLD)の光が出力される。

ファイバラマンレーザーと Yb³⁺:ファイバレーザーの光は WDM(Wavelength Division Multiplexer)カップラで合波されファイバから出力し、Tm³⁺-doped ZBLAN ファイバをコア励起する。フォトブリーチングによる出力の減少を抑制するために 532 nm によるフォトブリーチングを行なった。532 nm のレーザーは昭和オプトロニクス社製のダイオード励起固体 (DPSS: Diode Pumped Solid State)レーザーを用いた。Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバに入射される 813 nm のパワーは約 20 mW、532 nm は約 100 mW である。

また、532 nm の光はダイクロイックミラーを用いて 813 nm と合波され Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバへ入射される。

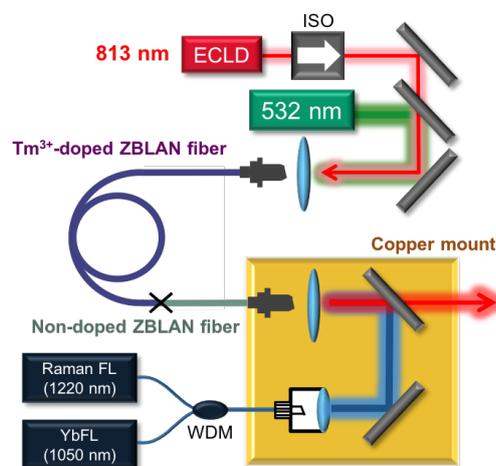


図 3.11 2 波長励起 MOPA の概略図

励起レーザーに用いた 1220 nm と 1050 nm のファイバレーザーについて説明する。図 3.12 に示される Tm^{3+} の吸収断面積のスペクトルからわかるように、1220 nm と 1050 nm の波長はそれぞれの吸収断面積のピークに相当する。そのため Tm^{3+} イオン間のエネルギー移動による励起アシスト効果が小さくても高効率な冷気が可能となる。

1220 nm の高輝度なファイバレーザーは 1050 nm の Yb^{3+} :ファイバレーザーと P 添加シリカファイバを用いて作り出すことが可能である。P 添加シリカファイバのラマン散乱によって 1050 nm の光が 1220 nm に変換され、FBG(Fiber Bragg Grating)によってファイバ共振器を構成することで誘導ラマン散乱によって共振器内で増幅されたラマン散乱光から高出力な 1220 nm が出力される。変換されなかった 1050 nm も同じファイバから出力されるので 1220 nm ファイバラマンレーザーは 1050 nm と 1220 nm の 2 波長ファイバレーザーになり得る。そのため 2 波長励起の最適なパワー比を知ることができれば、共振器設計を最適化することでシンプルなシステムにすることが可能である。本実験では 1220 nm のファイバラマンレーザーと 1050 nm の Yb^{3+} :ファイバレーザーを 1 台ずつ開発し励起レーザーとして用いた。これらのレーザーの詳細な構成や出力特性については[132]を参照されたい。 Yb^{3+} :ファイバレーザーとファイバラマンレーザーの構成(図 3.13、図 3.14)と出力特性(図 3.15)を示す。それぞれファイバを融着接続器で融着しオールファイバで構成されている。 Yb^{3+} 添加ファイバは Liekki 社製(YB1200-6/125DC-PM)で長さ 3 m のダブルクラッド PM(Polarization Maintaining)ファイバを用いた。PM ファイバは対称性が崩れているためクラッドを伝搬する光のスキュー光を抑制し、対称な構造をもつファイバよりもコアを通過する光を多くすることができ、高効率な増幅効果が得られる。さらに 8 角形のクラッドをもつファイバよりも PM ファイバの方が低損失な融着接続を行いやすいという利点がある。励起 LD については波長 976 nm のマルチモードファイバ出力の LD (BWT 社製)を使用した。LD を温度調整することで波長と出力パワーの安定したレーザー光が得られる。

ラマンファイバレーザーで用いた P ドープファイバは 1330 cm^{-1} に強いラマンシフトをもつ[133],[134]。 $1330\text{ cm}^{-1} = \frac{1}{1049.68\text{ nm}} - \frac{1}{1220\text{ nm}}$ より、約 1050 nm の光を P ドープファイバに入射すると 1220 nm のラマン散乱が生じるため、1050 nm の光から 1220 nm の光に変換することができる。つまり、1050 nm の Yb^{3+} :添加ファイバレーザーで励起された P ドープファイバを用いて 1220 nm で共振する共振器を構成することで 1220 nm における高輝度な光源が得られる。

Yb^{3+} :ファイバレーザー (1050 nm) とラマンファイバレーザー (1220 nm) を

1 台ずつ作製し添加濃度 5000 ppm の Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバ MOPA 用励起レーザーとして用いた。ラマンファイバレーザーの最大出力は 4.2 W、Yb ファイバレーザーの最大出力は 6.8 W である。

この 2 つの波長 (1050 nm + 1220 nm) での励起は、

1. 高輝度な励起が可能であること
2. 1 台から 2 波長を出力することも可能であるため小型化ができること
3. レンズを用いてファイバに同時入射した時に色分散が小さく収差が小さいという利点がある。

これらのレーザーの詳細な構成や出力特性については[132]を参照されたい。

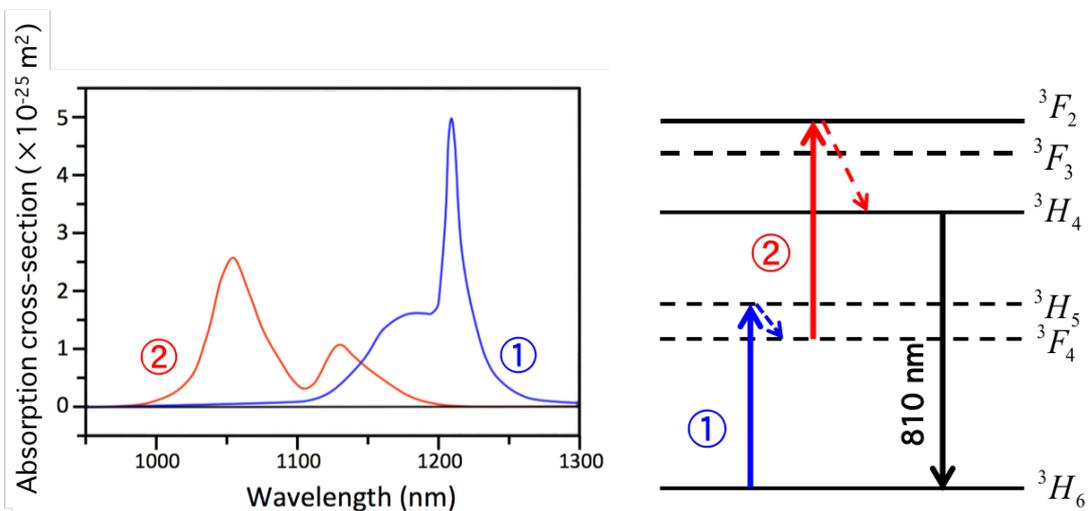


図 3.12 1 μm 帯における Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバの吸収断面積[135]と準位図

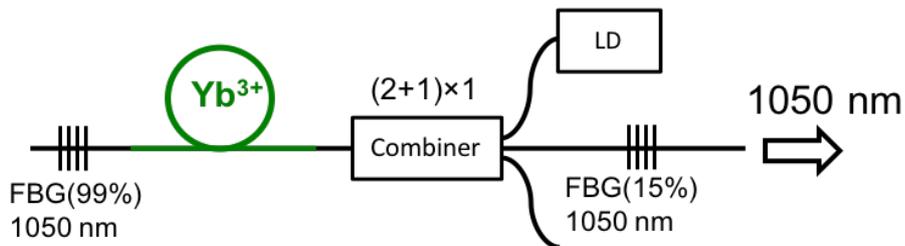


図 3.13 Yb^{3+} :ファイバーレーザーの概略図

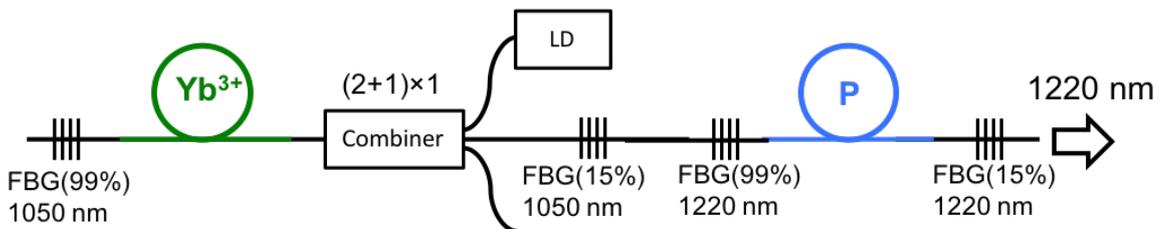


図 3.14 ファイバラマンレーザーの概略図

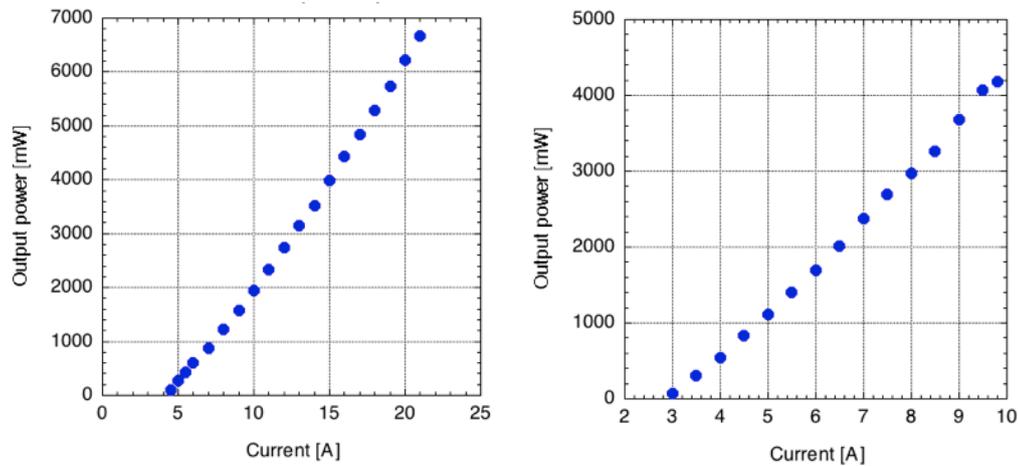


図 3.15 Yb³⁺:ファイバレーザー (左) とラマンファイバレーザーの出力特性 (右)

3.4.1.1. 増幅出力特性

増幅実験結果について記す。

図 3.11 で示される実験構成で増幅実験を行なった。

励起強度が高く熱によって出力の不安定性や破壊が生じてしまうことを避けるために、Tm³⁺-doped ZBLAN ファイバと Non-doped ZBLAN ファイバを 0.8 dB(17%)の損失で融着し融着点をペルチェで冷却した。これによって Tm³⁺由来の熱は融着点の冷却で抑え、ファイバ端面はジグ固定しペルチェで冷却した。信号光の入射側と励起光入射側の ZBLAN ファイバの両端面は 8°研磨されたフェルールとなっている。Non-doped ZBLAN ファイバに融着された Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバは添加濃度 5000 ppm、長さ 350 cm、コア径 4.5 μm、NA が 0.125 であり Non-doped ZBLAN ファイバのコア径は 4.5 μm、NA は 0.125 である。このようなファイバを用いて行った 2 波長励起手法による増幅特性結果を以下に記す。

入射励起パワー (1050 nm + 1220 nm) に対する増幅パワーを図 3.16 に示す。増幅された出力はパワーメータ (S314C、Thorlabs, Inc.) で測定した。赤色のプロットがフォトブリーチングを同時に行った増幅結果、青色がフォトブリーチング無しでの増幅結果となっている。5 秒毎に励起パワーを上げ、4.06 W まで入射励起パワーを上げた後、同様に 5 秒毎に 0 W まで下げた。この増幅実験における励起パワー比 (1220 nm の励起パワー/全体(1220 nm + 1050 nm)の励起パワー) は約 44 %となっている。フォトブリーチングを同時に行った場合には 810 nm 帯のファイバ光源では最高の出力である 1.95 W の最大出力を 48%の高いスロープ効率で達成することができた。この時の全体の励起パワーは 10.65 W(4.17

W:1220 nm、6.45 W:1050 nm) であり、励起光のファイバへのカップリング効率
はそれぞれ 52%: 1220 nm、42%: 1050 nm である。これに融着損失(0.8 dB)を考慮
すると最大の入射励起パワーは 4.06 W となる。

フォトブリーチングをしていない場合の増幅パワーにはヒステリシスがみえ
る。これは、励起パワーを上げていくとフォトダークニングが生じたために損失
が増えたことが原因である。この実験では 5 秒毎にステップしており、フォト
ダークニングによる損失が十分形成されない状態で次の励起パワーのステップ
に進む。そのため 5 秒以上の時間間隔にすると、フォトダークニングによる損
失が時間とともに大きくなるためヒステリシスがさらに大きくなると予想され
る。

フォトブリーチングを行いながら増幅させた場合はフォトダークニングによ
る損失が無い場合ヒステリシスが生じていない事がわかる。この結果から、再現
性良く同じ増幅特性を得るためにはフォトブリーチングが必須であるとわかっ
た。

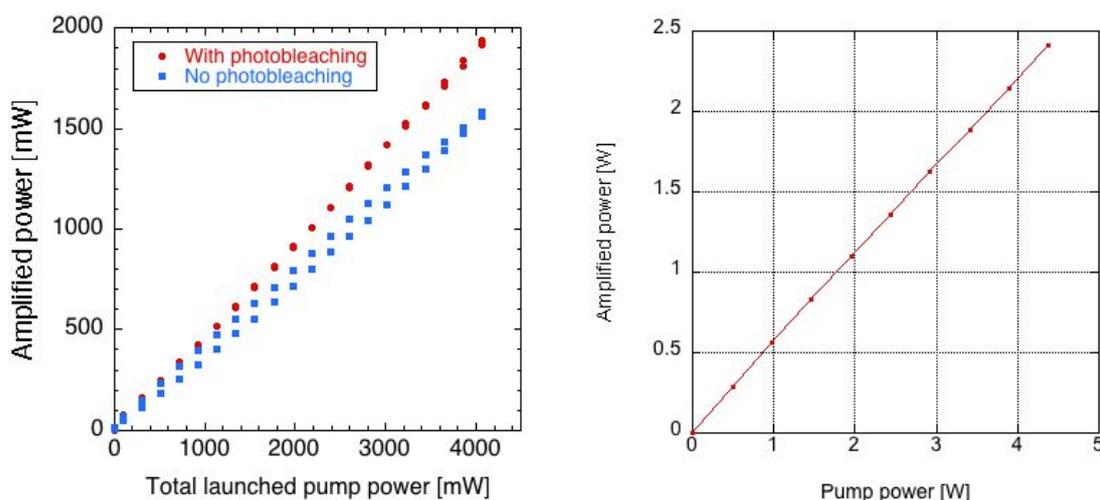


図 3.16 入射された励起パワーに対する増幅パワー (左) と計算結果 (右)

計算結果を図 3.16 (右) に示す。このシミュレーションにおいて励起パワー比
は 44%で計算した。その結果、55%のスロープ効率を示し実験結果よりも少し高
い値となった。添加濃度が比較的低いため、この計算ではエネルギー移動を考慮
していない。そのため N_3 以上の準位を考慮していない事や、寿命など計算に用
いた値が異なっている事が原因で実際の実験結果と違いが表れていると考えら
れる。実験結果や計算結果からも飽和は見られておらず、より高い励起パワーで
励起することができればさらなる高出力化が期待される。計算結果では 5 W 以
上の出力でも飽和することなく出力できると予測されている。

3.4.1.2. 2 波長励起パワー比による変換効率の違い

次に様々な励起パワーで増幅実験を行い、最大変換効率とその時の最適励起パワー比を調べた。入射励起パワー比に対する変換効率を図 3.17 に示す。図 3.17 は入射励起パワーが 2500 mW から 3100 mW 時の変換効率である。フォトブリーチングを行いながら増幅実験を行ったのでフォトダークニングによる影響は十分抑えられている。図 3.17 より、全体の入射励起パワー (1220 nm + 1050 nm) に対する 1220 nm のパワーが 41% の時に最大変換効率 50% が達成できることがわかった。1220 nm と 1050 nm の波長はそれぞれ 1 段目と 2 段目の励起における共鳴波長に相当し、それぞれの励起パワー比は励起率の比に置き換えられる。 $^3\text{H}_5$ 準位への励起効率は 1 段目と 2 段目の励起過程の小さい励起率で律速されるため、それぞれの励起率が等しくなる時に最も変換効率が高くなると考えられる。

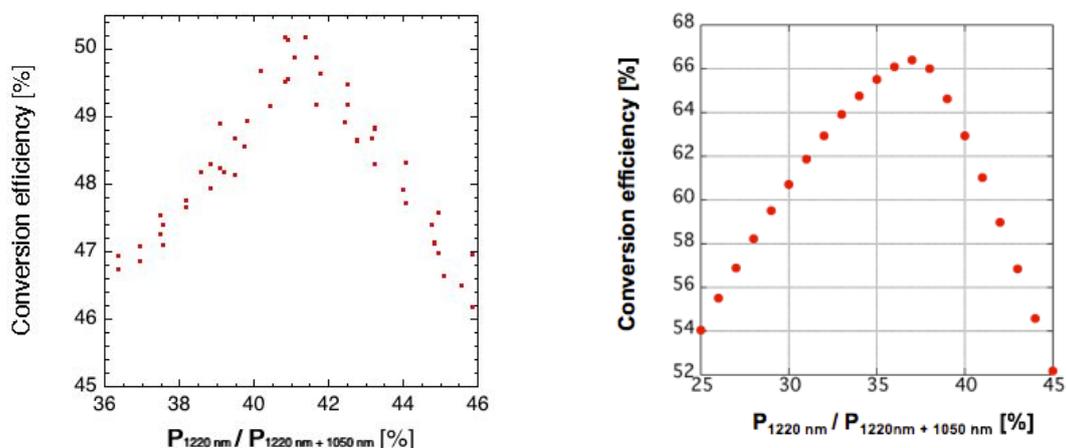


図 3.17 励起パワー比に対する変換効率の実験結果 (左) と計算結果 (右)

1 段目と 2 段目の励起率の比は $\sigma\lambda\Gamma P$ の値の比で考えられる。 σ は吸収断面積、 Γ はオーバーラップファクターである。1 段目の吸収断面積 $4.0 \times 10^{-25} \text{ m}^2$ (1220 nm) [136] と、2 段目の吸収断面積 $1.0 \times 10^{-25} \text{ m}^2$ (1050 nm) [137]、そしてオーバーラップファクターを考慮すると励起率の比が等しくなるときは $\frac{P_{1220\text{nm}}}{P_{1220\text{nm}} + P_{1050\text{nm}}} = 22.7\%$ となる。この値と計算結果が異なる原因として ESA など他の準位への遷移レートが寄与している事が考えられる。また、実験結果が計算結果と異なる原

因として、使用している Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバの吸収断面積や放出断面積などの値が正確でない事が考えられる。吸収・放出断面積、遷移寿命、エネルギー移動率など計算に必要な値は母材や組成によって異なるため、正確な値を知るためには実測する必要がある。

3.4.1.3. 増幅光スペクトル

次に、増幅光スペクトルと増幅パワーの出力安定性について記述する。

約 4 W の入射励起パワーで励起された時の増幅光スペクトルを図 3.18 に示す。このスペクトルは光スペクトラムアナライザ (MS9710C、アンリツ株式会社) を用いて取得した (分解能 0.05 nm)。このスペクトルより、 Tm^{3+} の利得中心波長 (808 nm) の ASE が大きいため 35 dB 程度の信号対雑音比 (SN 比 : Signal-to-Noise ratio) となった。これは利得ファイバ長が長いために信号光の吸収が大きくなってしまい、高い誘導放出遷移率が得られなかったことが原因だと考えられる。そのため、高い SN 比を得るためには信号光の入射パワーを上げる必要がある。

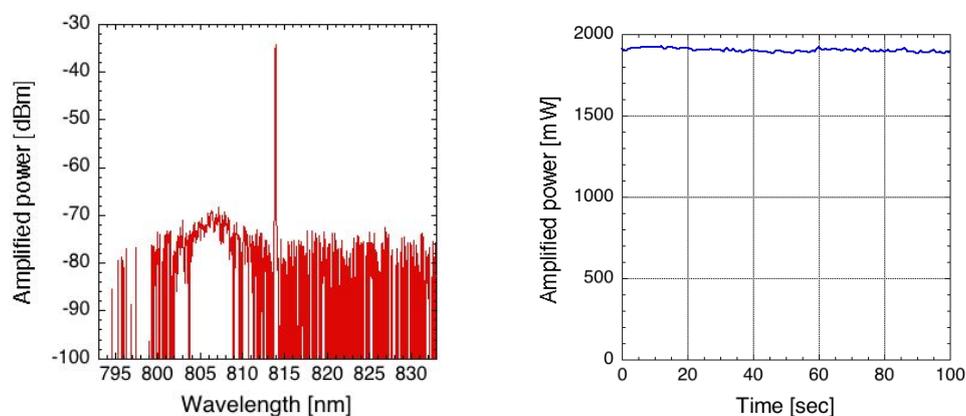


図 3.18 2 波長励起増幅パワースペクトル (左) と増幅光パワー揺らぎ (右)

図 3.18 (右) にフォトブリーチングしながら増幅動作した時の出力の時間変化を示す。増幅パワーの変動は 1 秒ごとに測定し PC で取り込んだ。増幅パワーは数分間程度であれば安定して出力でき、532 nm のフォトブリーチングによってフォトダークニングが十分抑制できる事が確認できた。

3.4.1.4. 低添加濃度ファイバ MOPA (2 波長励起) のまとめ

2 波長励起ファイバ MOPA の結果についてまとめる。低添加濃度の Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを使用し、532 nm の光でフォトブリーチングしながら増幅実験を行った。その結果、2 波長励起(1050 nm + 1220 nm)では最適励起パワー比 41%で最大 50%の変換効率を実現できることがわかった。さらに、最大増幅出力 1.95 W を達成し飽和もみられてない事から更なる高出力化も可能であると示すことができ、810 nm 帯のファイバ出力光源の中では世界最高出力を達成できた。しかし SNR は 35 dB 程度と低い結果となり、他の光格子用レーザーと比較すると半導体 MOPA よりも低い値となった。

本節の実験において以下のことがわかった。

- i 532 nm のフォトブリーチングが有効であるとわかった
- ii 2 波長励起で高い変換効率を得られることがわかった

表 3.6 2 波長励起 MOPA 動作特性

濃度 [ppm]	5000	最大出力 [W]	1.95
長さ [cm]	350	光-光変換効率 [%]	48
コア径 [μm]	4.5	電力変換効率[%]	0.50
励起波長 [nm]	1050+1220	SN 比 [dB]	35
NA	0.125	長期動作	2 分
		フォトブリーチング	あり
備考：システムが複雑			

フォトブリーチングが有効であるとわかったので、次の実験では以前まで行なっていた 1 波長励起の構成にフォトブリーチングを適用した。

次節では高い添加濃度の Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いてフォトブリーチングしながら 1 波長励起して増幅動作した結果について記述する。

3.4.2. 高添加濃度ファイバ MOPA (1 波長励起)

ここでは、高添加濃度ファイバを用いた MOPA の増幅特性について記述する。

前述したが、高添加濃度の場合 Tm^{3+} イオン間のエネルギー移動による励起アシスト効果によって 1 波長励起でも高い変換効率を得られる。しかしその一方で Tm^{3+} イオンがエネルギー移動によって高い準位へ励起されるためフォトダ

ークニングが生じやすくなってしまふ、といった特徴がある。

添加濃度が高い場合にエネルギー移動によって ${}^3\text{H}_4$ 準位へ効率よく Tm^{3+} が励起されるメカニズムについて説明する。励起に用いる 1050 nm は基底準位の吸収断面積が小さいため基底準位吸収 (Ground-state absorption: GSA) が小さいが、最初に 1050 nm の励起によって中間準位に励起される。そして、1050 nm は ESA の共鳴中心波長に相当するため中間準位に励起された Tm^{3+} イオンはすぐに ${}^3\text{H}_4$ の上準位に励起される。上準位に励起されると CR (Cross-relaxation) によって基底準位の Tm^{3+} が中間準位にエネルギー移動によって遷移され、1050 nm の励起によって上準位に励起される。このようなフォトンアバランシェ効果[138]によって GSA の吸収が小さいにも関わらず高効率な励起が行われる[139]。CR と反対のプロセスである ETU(Energy transfer upconversion)も生じるが、 ${}^3\text{F}_4$ に存在する原子数に比例する遷移率を持つ。1050 nm で励起する場合は ESA による励起率が大きいいため中間準位の原子数は少なくなる。そういった理由から ETU よりも CR の方が支配的になると考えられ、添加濃度が高い場合は CR(Cross-Relaxation) による励起アシスト効果によって 1 波長励起でも高い出力を得られる[23], [26]

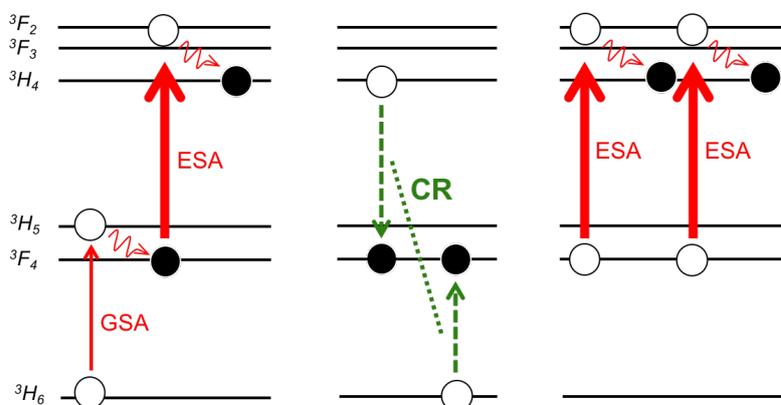


図 3.19 CR と ESA によるアップコンバージョン励起過程

一方でイオン間相互作用によるエネルギー移動によって ${}^1\text{G}_4 \rightarrow {}^1\text{D}_2$ への遷移が行われるためフォトダークニングが生じやすいと考えられる。ここでの実験では 1 波長励起とフォトブリーチングを同時に行い、高出力時でもフォトダークニングが十分抑制され安定して高いパワーを出力できるかどうかを調べた。

実験概略図を以下に示す。

マスターレーザーはこれまでと同じフィルター型の ECLD を用いた。グリーンレーザーは DPSS レーザ (SDL-532-800T : Shanghai Dream Lasers Technology Co., Ltd) を用いた。Pump laser は 2 波長励起 MOPA で用いた Yb^{3+} :ファイバレーザー

(1050 nm) を使用した。Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバ (ファイバーラボ (株)) は添加濃度 15000 ppm、長さ 96 cm、コア径 4.5 μm、NA が 0.12 であり 813 nm でシングルモードとなっている。そして Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバの両端面は 8° 研磨されている。グリーンレーザーの Tm³⁺ 添加 ZBLAN ファイバへの入射パワーは約 70 mW、マスターレーザーの入射パワーは約 20 mW である。これまでと同様に Yb³⁺:ファイバレーザーの励起光を後方からコア励起して増幅を行った。励起光側の Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバはジグで固定されペルチェで冷却されている。

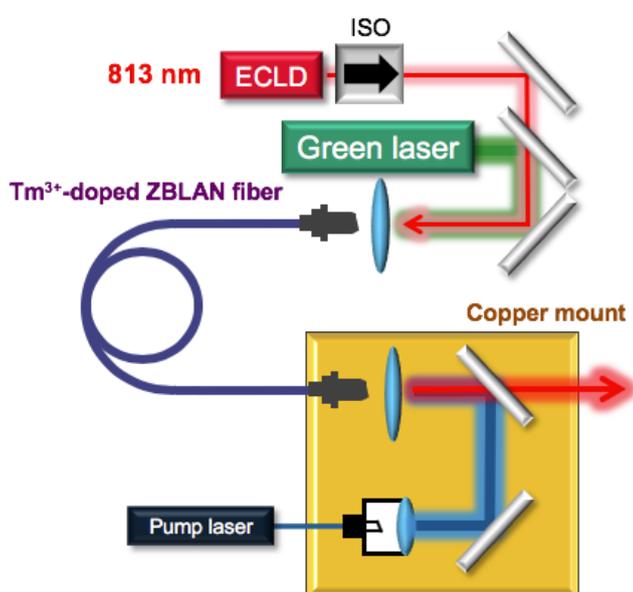


図 3.20 1 波長励起実験概略図

3.4.2.1. 増幅出力特性

入射励起パワー(1050 nm)に対する増幅パワーを図 3.21 に示す。赤いプロットがフォトブリーチングしながら行った増幅パワー、青色がフォトブリーチングなしの状態での増幅パワー、そして赤線は matlab で計算したシミュレーション結果である。フォトブリーチングしていない状態の増幅実験ではフォトダークニングによって増幅出力が減少し約 1 分程度で出力が一定になった。図 3.21 の出力結果は定常状態に落ち着いた時の値でプロットした。励起パワーを大きくしていくとフォトダークニングによる損失が大きくなるため、出力が飽和していった。

増幅パワーは励起光源の Yb³⁺:ファイバレーザーの出力で制限されており、最大で 3 W の励起パワーまで入射した。フォトブリーチングを同時に行った結果、

1.35 W の増幅出力が得られた。スロープ効率は 45% であり 2 波長励起時と同程度の高いスロープ効率で増幅できることがわかった。このとき励起光のカップリング効率は約 50% であり、3 分毎に励起パワーを上げて増幅パワーを測定した。出力はパワーメータ (S314C、Thorlabs, Inc.) で測定した。この結果から、CR による励起アシスト効果が十分行われたため、計算結果と実験の両方で高いスロープ効率が得られたと考えられる。

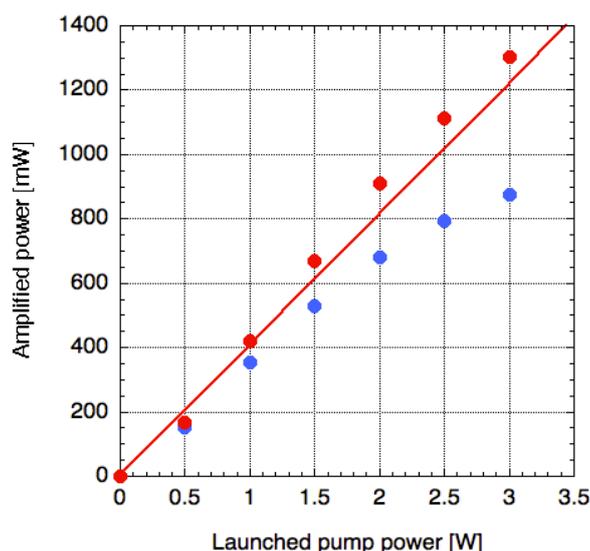


図 3.21 1 波長励起の増幅パワー

(赤：ブリーチング有り、青：ブリーチングなし、赤線：シミュレーション)

3.4.2.2. 増幅光スペクトル

最大増幅パワー時の増幅スペクトルを光スペクトラムアナライザ (AQ-6315A: 安藤電気株式会社) で測定した (分解能 0.20 nm)。図 3.22 より増幅パワーの SN 比は 40 dB 程度であり 2 波長励起よりも高い SN 比が得られた。フォトブリーチングをしていない場合の増幅パワースペクトルも図 3.22 と同じ SN 比が得られた。

次に増幅パワーの時間変化を PC で 1 秒ごとに取り込みながら測定した (図 3.22 (右))。フォトブリーチングした状態での増幅パワーは 20 分以上安定して出力できたが少しずつフォトダークニングによって増幅パワーが減少した。この理由として、フォトブリーチングのパワーが足りなかったためにフォトダークニングを十分抑制できなかった事、もしくはフォトブリーチングのフォトンエネルギーでブリーチングできない欠陥が生じている事が考えられる。安定に出力するためにはフォトダークニングの更なる抑制が必要であると考えられる。

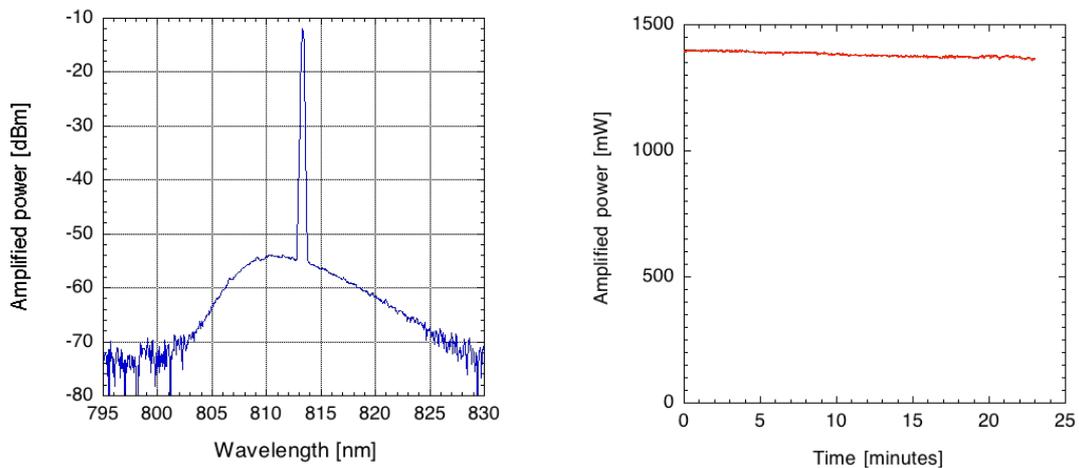


図 3.22 1 波長励起時の増幅光スペクトル (左) と出力の時間変化 (右)

3.4.2.3. 高添加濃度ファイバ MOPA (1 波長励起) のまとめ

高添加濃度の Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを 1 波長で励起し、フォトブリーチングを同時に行いながら増幅動作することで、2 波長励起と同等の高いスロープ効率を実現できることがわかった。この結果からフォトブリーチング (532 nm) によって高添加濃度ファイバにおいてもフォトダークニングが十分抑制されることがわかった。この理由として、高い誘導放出率で増幅動作が行われ ESA が抑えられたためだと考えられる。しかし、長時間動作した場合にはフォトダークニングによって徐々にパワーが減衰していく様子がみられた。これらの結果から、シンプルな系で再現性良く 1 W 以上出力する事が可能になったが、フォトダークニングの抑制がまだ不十分であることがわかった。したがって、高い出力をより安定維持するためには更なるフォトダークニングの抑制を行う必要がある。SNR は 40 dB が得られた。

まとめるとこの実験から以下のことが言える。

- i フォトブリーチング + 1 波長励起で高い変換効率を得られた
- ii シンプルな系で高い変換効率を得られた
- iii 長期動作時にはフォトダークニングによってパワーが減衰した

表 3.7 1 波長励起 MOPA 動作特性

濃度 [ppm]	15000	最大出力 [W]	1.35
長さ [cm]	96	光-光変換効率 [%]	45
コア径 [μm]	4.5	電力変換効率 [%]	0.68
励起波長 [nm]	1050	SN 比 [dB]	40
NA	0.125	長期動作	23 分
		フォトリチング	あり
備考：シンプルなシステム、長期動作時は PD によって出力が減少			

低添加濃度の場合と高添加濃度の場合を比較すると同等のスロープ効率や増幅特性が得られる事が実験から明らかになった。そして、光格子用レーザー開発にとっては高添加濃度のファイバを用いた 1 波長励起システムの方がよりシンプルであるため小型・堅牢化、電力変換効率に対しても優れている。そのため、高添加濃度 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いた Yb ファイバレーザー励起システムを採用し光格子用レーザーの開発を進めた。

今回得られた SNR については、プリアンプを用いて信号光の出力を向上する事でより高い値が得られると考えた。そこで、SNR の向上、そして高出力化やフォトリチング抑制を目的として高添加濃度のファイバを用いたプリアンプを開発しカスケードアンプを構築しより良い光格子用レーザーの開発を試みた。

3.5. SNR の向上と長期動作に向けたカスケードアンプ の開発

本節では、前節の結果を受けて SNR の向上だけでなく安定高出力化やフォトリチング抑制を目的にプリアンプを新たに開発し、カスケードアンプを構築した。新たに開発したプリアンプやカスケードアンプの出力特性や増幅スペクトルの結果について記述する。

3.5.1. プリアンプの開発

本節では新たに開発したオールファイバタイプのプリアンプについて記す。

プリアンプミラーやレンズを用いないオールファイバ系で構成した。ZBLANファイバのコアに偏心があるため調芯可能な特別な治具を用いて Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバとシリカファイバを機械的に結合した。しかし、低損失な結合ができて 5 W 近くの励起パワーを入射すると結合点が焼けてしまうため高い励起パワーは用いることができない。この焼ける原因はファイバをフェルール内に固定しているエポキシ樹脂が熱で溶け結合点で焼け付いてしまうことが主な原因である。そこで、安定に長時間動作することを目的に励起パワー 1 W 程度で動作させることにした。

3.5.1.1. Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバ長に対する増幅特性の違い

まず、プリアンプで用いるファイバ長の選定のため、数種類の利得ファイバの増幅特性を調べた。ファイバ長が短い方が高い SN 比を得られるが短すぎて吸収飽和が生じると高い増幅パワーが得られない。一方で、ファイバ長が長すぎると SN 比が低くなってしまいフォトダークニングによる損失が大きくなってしまう。そこで様々な長さの Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバの増幅実験を行いそれぞれの増幅パワーを調べた。図 3.1 のような基本的な実験構成で増幅実験を行った。813 nm の入射パワーは 20 mW、そして Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバ（ファイバラボ（株））の添加濃度は 15000 ppm、コア径は 4.5 μm、NA は 0.12 であり両端面は 8°研磨されたフェルールでできている。フォトブリーチングを行わなかった場合の増幅結果を図 3.23 に示す。Tm³⁺添加 ZBLAN ファイバの長さはそれぞれ、青色：1121 cm、水色：96 cm、赤色：60 cm、緑色：40 cm である。この増幅実験では 3 分毎に励起パワーを上げ、フォトダークニングによって増幅パワーが減衰し、落ち着いた増幅パワーの値をパワーメータ（S314C、Thorlabs, Inc.）で取得した。励起パワーが大きくなるとフォトダークニングが強くなるため定常状態に落ち着く時間が長くなるがだいたい 2 分程度で増幅パワーは落ち着いた。

図 3.23 より、励起パワーが低いときは短い利得ファイバの方が 813 nm の再吸収が少なくなるため高い変換効率を得られている。一方で利得ファイバが長い場合は信号光の吸収が大きいため励起パワーが低い時の増幅パワーが低くなっている。励起パワーを高くすると、短い利得ファイバでは飽和が生じ ESA が大きくなるため、フォトダークニングによる損失が増加し増幅パワーの減衰が生

じている。利得ファイバが長くなると飽和しないため、ESA が抑えられフォトダークニングが抑制されるためパワーの減衰が生じていないと考えることができる。

次に、フォトブリーチングしながら増幅実験した場合を図 3.24 に示す。フォトブリーチングに使われた 532 nm のパワーは約 100 mW であり、使用したレーザーは DPSS レーザー (SDL-532-800T : Shanghai Dream Lasers Technology Co., Ltd) である。フォトブリーチングと同時に励起を行うとすべての利得ファイバ長さの場合で増幅パワーが向上された。しかし 40 cm の利得長の場合、励起パワーを高くすると飽和が生じフォトブリーチング無しの時と同様に増幅パワーが減少した。この原因は飽和が生じたことで ESA が大きくなり、532 nm のフォトブリーチングで抑制できないほどフォトダークニングレートが大きくなったからだと考えられる。

以上の結果から 1 W 程度で励起する場合には 40 cm 程度の短い長さで高い増幅パワーが得られることがわかった。

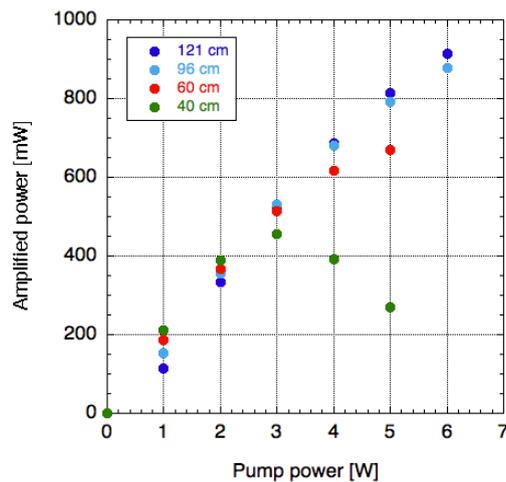


図 3.23 フォトブリーチング無しにおける励起光パワーに対する増幅パワー (緑 : 40 cm、赤 : 60 cm、水色 : 96 cm、青 : 121cm)

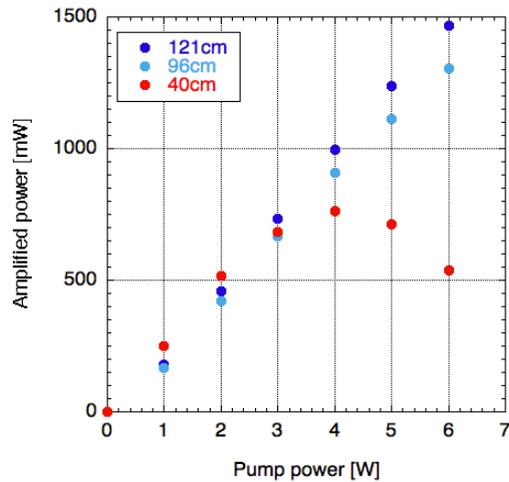


図 3.24 フォトブリーチングを同時に行った場合の励起光パワーに対する増幅パワー（赤：40 cm、水色：96 cm、青：121cm）

3.5.1.2. プリアンプの構成

前項の実験から 1 W 程度の励起パワーで励起する場合は 40 cm 程度の利得長で良いことがわかった。その結果を受けて、ここでは 48 cm の Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いた。コア径は $4.5 \mu\text{m}$ 、添加濃度は 15000 ppm、NA は 0.12 であり 813 nm においてシングルモードである。両端面は 8° 研磨されており同様に 8° 研磨されたシリカファイバ(780 HP)と調芯ジグで機械的に結合した。この時、635 nm のレーザー光源を用いて透過パワーが最大になるように調芯し、1 dB 以下の損失になる状態で固定した。軽く叩いて衝撃を与えても透過パワーは変化しなかったため多少の振動に対しても堅牢な結合状態になっているといえる。励起用レーザーとして新しく Yb^{3+} :ファイバレーザーを作製し、WDM ファイバカップラを用いて励起した。増幅された光は 813 nm の偏波無依存型のインラインアイソレータを通して出力される(図3.25)。シリカファイバについてはすべて 780HP で構成されており、813 nm においてシングルモードで出力される。このプリアンプにおいて励起パワーは 1 W で使用した。



図 3.25 プリアンプ概略図

3.5.1.3. プリアンプの利得波長帯域と増幅スペクトル

作製したプリアンプの増幅特性評価を行なった。これまでは 813 nm で固定して実験していたが、増幅可能な波長帯域を測定するためにマスターレーザーをチタンサファイアレーザーに変え、信号光の波長を 792 nm から 820 nm まで変えた時の増幅パワーを測定した。どの信号光の波長においても入射パワーは約 10 mW でそろえた。それぞれの波長に対する励起パワー 1 W における増幅パワーを図 3.26 に示す。出力されたパワーはパワーメータ (S132C、Thorlabs, Inc.) で測定した。利得中心の 808 nm が最も増幅パワーが高く約 795 nm から 815 nm で 10 dB 以上の利得が得られることがわかった。また 820 nm や 793 nm など利得中心から離れた波長では増幅パワーが時間とともに減少し、図 3.26 に示すパワーに落ち着いた。この増幅パワーの減少は ESA によって生じるフォトダークニングが原因だと思われる。したがって、利得が小さい波長では信号光が増えにくいために誘導放出率が小さくなり、結果として ESA が大きくなりフォトダークニングによる損失が増加したと考えられる。そのため、フォトダークニングを抑制すれば増幅可能な波長帯域を向上することが可能だと考えられる。

次に、増幅パワーのスペクトルを図 3.27 に示す。利得中心波長で最も ASE (Amplified Spontaneous Emission) が小さく利得中心から離れると ASE が大きくなっていることがわかる。これまでと同様に利得が小さいと誘導放出率が小さくなるため、ESA が大きくなるだけでなく、ASE も大きくなったためだと思われる。利得中心の波長 808 nm から信号光の波長を離していくと 790 nm や 820 nm 辺りで ASE が大きくなり最終的には ASE のピーク付近で寄生発振が観測された。そのため、利得の小さい波長で使用する時は戻り光の抑制に気をつける必要がある。

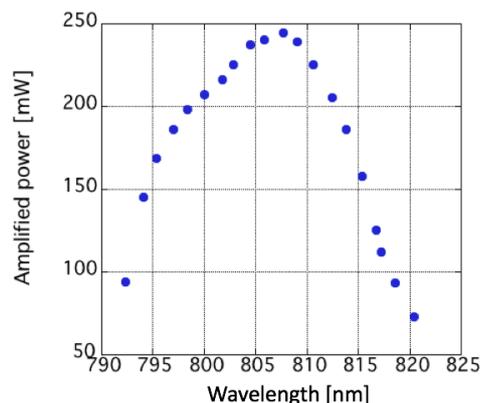


図 3.26 波長に対するプリアンプの増幅パワー

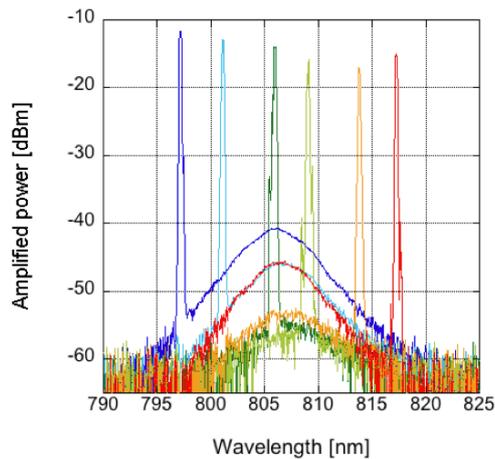


図 3.27 さまざまな波長における増幅スペクトル

3.5.1.4. 813 nm におけるプリアンプの増幅パワーと増幅スペクトル

次に、813 nm での増幅特性について記す。マスターレーザーを ECLD に戻して実験を行なった。Yb³⁺:ファイバレーザーの出力 1 W で励起すると約 200 mW の増幅パワーが得られ、長時間安定して出力された (図 3.28 (左))。さらに 50 dB 以上の SN 比が得られた (図 3.28 (右))。多少増幅パワーが変動するが、これは信号光のカップリング変動とフォトダークニングによる損失の温度依存性が原因だと考えられる。

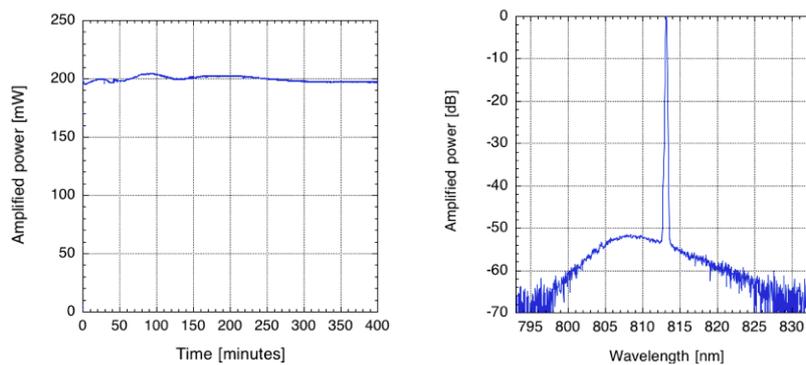


図 3.28 プリアンプからの増幅パワーの変動 (左) と増幅パワースペクトル (右)

そして次に、このプリアンプを用いてカスケードアンプを構築し、特性を評価した。

3.5.2. カスケードファイバアンプ

これまで開発したプリアンプを用いて実験を行なった。信号光のパワーがプリアンプによって向上されたので増幅出力と SN 比が向上されると期待できる。

3.5.2.1. カスケードファイバアンプの出力特性

まず、フォトブリーチング無しで増幅実験を行った結果について記す。図 3.29 のような実験系を構築した。マスターレーザーと励起光入射部以外はファイバで構成されている。信号光が入射されるシリカファイバ (780HP) と Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバの結合部は調芯ジグを用いて機械的に結合されており、損失は 1 dB 以下になっている。使用した Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバは添加濃度 15000 ppm、長さ 96 cm、コア径 4.6 μm 、NA は 0.12 であり 813 nm においてシングルモードである。プリアンプによって 100 mW まで入射信号光パワーを増加した時の増幅パワーを調べ、3.6.2 項の結果と比較した (図 3.30)。赤色の結果が信号光の入射パワー 100 mW の時、青色が 20 mW の時の結果である。この増幅結果の違いをみると低い励起パワーでは約 100 mW 程度の差があるが励起パワーを高くするとその差が大きくなっていることがわかる。信号光の入射パワーが大きく小信号利得領域でないため、入射された信号光パワーの分だけ増幅パワーが増えている。励起パワーが高くなると信号光 20 mW の場合はフォトダークニングが原因で増幅パワーが低下するため増幅出力の差が広がっていると考えられる。したがって、プリアンプを用いると入射信号光パワーが大きくなるため、ESA が抑制されフォトダークニングによる増幅パワーの低下が抑えられた。

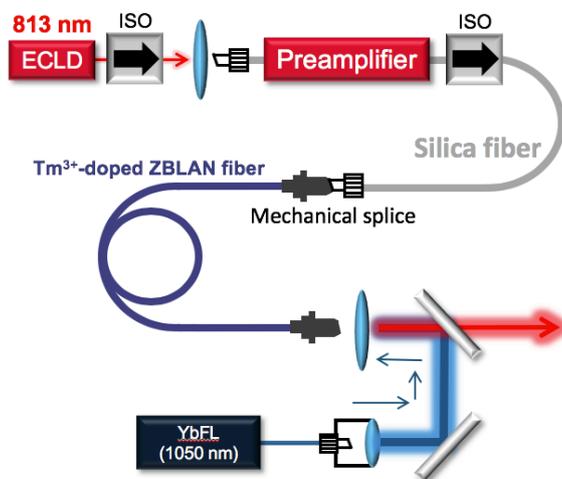


図 3.29 カスケード MOPA 概略図 (フォトブリーチング無し)

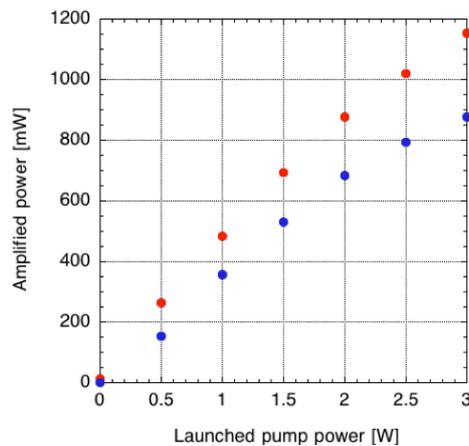


図 3.30 フォトブリーチング無しでの増幅パワー（赤：信号光入射パワー100 mW、青：信号光入射パワー20 mW）

次に、フォトブリーチングをしながら増幅実験したカスケードアンプについて記す。実験系の概略図は図 3.31 に示す。プリアンプからの光は空間に出力されダイクロイックミラーを用いて 532 nm のレーザー光と合波して Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバ（添加濃度 15000 ppm、コア径 4.6 μm 、長さ 96 cm、NA=0.12）に入射した。 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバについてはフォトダークニングによる損失が生じていないファイバを使用した。フォトブリーチングに用いた 532 nm レーザーはこれまでと同様の DPSS レーザー（SDL-532-800T：Shanghai Dream Lasers Technology Co., Ltd）を用いた。532 nm の Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバへの入射パワーは約 100 mW である。増幅実験の結果を図 3.32 に示す。比較として 3.6.2 項の結果を青色で示した。フォトブリーチングをしながら実験した場合においても信号光を 100 mW に増やすと増幅パワーが向上した。しかし励起パワーが高くなるとその差が大きくなっている。これは信号光パワーが小さい場合では高い励起パワー時にフォトダークニングによる損失が影響していると考えられる。

最大出力については、フォトブリーチングをしながら増幅した場合では最大 1.5 W の増幅出力がえられ、フォトブリーチングなしでは最大 1150 mW が得られた。増幅パワーは励起レーザーの出力で制限されており、飽和が見られないので高出力な励起レーザーによって更なる高出力化が可能であると考えられる。

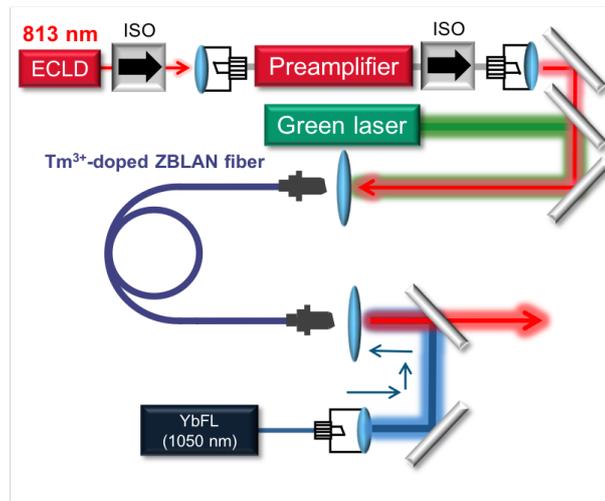


図 3.31 カスケード MOPA 概略図 (フォトブリーチングあり)

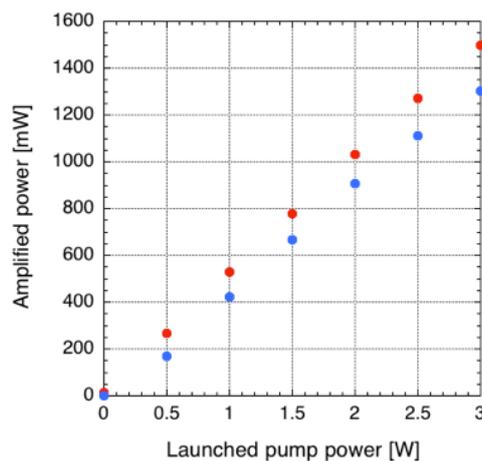


図 3.32 フォトブリーチングありでの増幅パワー (赤：信号光 100 mW、青：信号光 20 mW)

3.5.2.2. カスケードファイバアンプの増幅出力スペクトル

次に、増幅パワーのスペクトルを光スペクトラムアナライザ (AQ-6315A: 安藤電気株式会社) を用いて分解能 0.1 nm で測定した (図 3.33)。比較としてわかりやすいように最大値が 0 dBm になるようにした。赤色のスペクトルが信号光パワー 100 mW の時で青色が入射パワー 10 mW 時の増幅スペクトルであり、この時の励起パワーは 2.5 W でフォトブリーチングも同時に行っている。フォトブリーチングの有無によって増幅パワースペクトルはほとんど変化がなかった。このスペクトルの結果から信号光を強くする事で ASE が抑制され 50 dB 以上の高い SN 比が得られることがわかった。

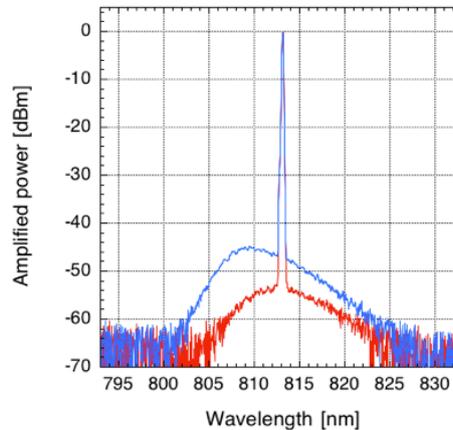


図 3.33 増幅パワースペクトル (赤：信号光 100 mW、青：信号光 10 mW)

信号光のパワーが小さい場合は誘導放出遷移率が小さいために ASE が大きくなっている。プリアンプでは、励起パワー 1 W に対して効率良く増幅するためプリアンプ部では高い誘導放出率で増幅動作が行われている。このように、励起パワーに対して効率よく増幅動作するファイバ長を用いて徐々に増幅することで ASE が抑制されていると考えられる。つまり、形成される利得に対する信号光の入射パワーが大きいほど誘導放出遷移率が高くなるため、カスケードアンプの構成によって利得を 2 段階に分けた事により高い誘導放出遷移率で増幅動作し ASE が抑制されたと考えられる。より多段にして最適化することで SNR のさらなる向上や ASE の抑制が期待できる。

半導体 MOPA を光格子用レーザーとして用いた Sr 光格子時計では、インコヒーレントな光 (ASE) によって周波数シフトが生じてしまうため 10^{-16} 程度の不確かさで制限されている [2], [140]。バンドパスフィルターで ASE をカットする試みも行われているがフィルターの帯域内に残った ASE によって 17 桁以上の不確かさを得ることは難しい [2], [121]。また、長波長側の ASE による周波数シフトの一部は短波長側の ASE によってキャンセルされるため、ASE のスペクトル形状は対照的な方が望ましい [121]。図 3.33 の結果は、スペクトルの形状も長波長側と短波長側で非対称性は小さく、また SNR も半導体 MOPA の一般的な値 (40 dB) より高いため半導体 MOPA でトラップするよりも高い周波数不確かさが得られると考えられる。

3.5.2.3. カスケードファイバアンプの出力動作

次に、長期動作した時の増幅パワー変化について記す。カスケード MOPA の出力の時間変化を PC で 1 秒ごとに取り込んだ。長時間動作した時の増幅パワー変化を図 3.34 に示す。左が図 3.29 の実験系の時（フォトブリーチングなし）、右は図 3.31 の実験系の時（フォトブリーチングあり）の結果である。

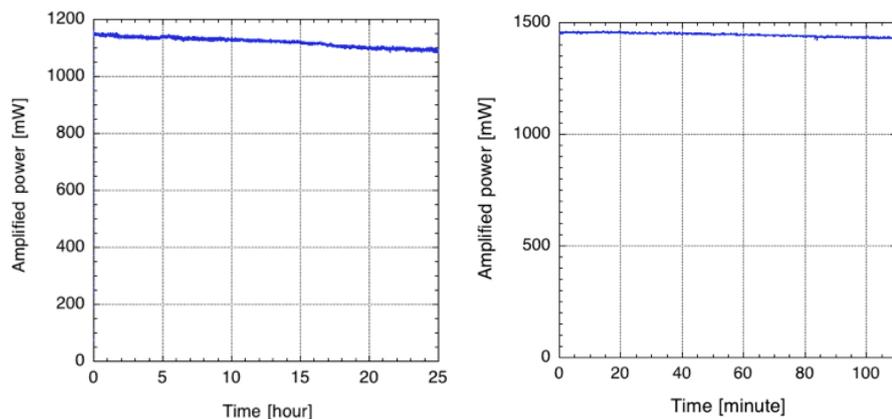


図 3.34 長期動作時の増幅パワー変化（左：フォトブリーチングなし、右：フォトブリーチングあり）

フォトブリーチング無しの構成では励起光入射部以外のほとんどがファイバで構成されているため 1 日以上安定に動作することができた。しかし少しずつ増幅出力が減少していることがわかる。これはフォトダークニングによるもので、長期動作後に 532 nm でフォトブリーチングすると増幅出力がフォトダークニング前の値に戻った事から確認した。一方で、フォトブリーチングしながら増幅動作した時の増幅出力の減少はアライメントを調整すると増幅出力が元に戻った事からアライメントのずれが原因だと思われる。励起光のアライメントがずれた時にフォトブリーチングに用いた 532 nm の吸収が大きくなる現象が見られた。この原因の 1 つに、アライメントがずれた際にクラッド伝搬した励起光が熱になり、それによってダークニングが強くなった事が考えられる。原因については未だわかっていないが、 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを高強度に励起した時のフォトダークニングの熱依存性を詳細に調べる事で明らかになるかもしれない。

3.5.3. カスケードファイバアンプのまとめ

ここでは、プリアンプを用いたカスケードアンプの実験結果についてまとめる。

SNR の向上や高出力化、フォトダークニング抑制を目的に、新たにプリアンプを開発しカスケードアンプを構成した。50 dB 以上の SNR で長時間安定に 200 mW 出力できるオールファイバのプリアンプを開発し、カスケードアンプを構成することで 50 dB 以上の高い SNR を達成することができた。この結果は半導体 MOPA の光格子用レーザーよりも高い SNR であるため、半導体 MOPA を使用した場合よりも高い周波数不確かさが得られる。長時間動作についてはフォトブリーチングありの場合は 2 時間程度、フォトブリーチングなしの場合では 1 日以上安定動作を実現することができた。フォトブリーチングありの場合ではアライメントのずれが原因であるため、信号光入射部に WDM ファイバカップラを用いることで改善されると思われる。フォトブリーチングなしの場合ではフォトダークニングが原因で長時間動作すると少しずつ出力が減少した。より安定に動作するためには更なるフォトダークニング抑制を行う必要がある。

本節で以下のことがわかった。

- i カスケードアンプにすることで 50 dB 以上の SNR が得られた
- ii プリアンプによって ESA が抑制されフォトダークニングが抑制された

表 3.8 カスケードアンプ動作特性

濃度 [ppm]	15000	最大出力 [W]	1.5
長さ [cm]	100	光-光変換効率 [%]	50
コア径 [μm]	4.6	電力変換効率 [%]	0.60
励起波長 [nm]	1050	SNR [dB]	>50
NA	0.125	長期動作	2 時間
		フォトブリーチング	あり
備考：アライメントのずれが無ければ長期動作可能			

これまでの結果から、ESA の抑制がフォトダークニングの問題解決にとって重要であることがわかった。現在は 2 段構成だが、もちろん更に多段にすることでよりフォトダークニングの抑制は可能になり、さらに最適化する事で SNR

の向上も期待できるがわかった。両方とも、ESA を抑制し高い誘導放出率を実現する事で性能の向上に寄与する。そこで、次節では信号光の入射パワーとフォトダークニングの関係性について定量的に評価した。

3.6. 813 nm によるフォトダークニングの抑制

これまでの実験よりカスケードアンプにすることで高い SNR が得られることがわかった。また、プリアンプ無しの場合ではフォトダークニングによって増幅出力が少し飽和したが、カスケードアンプにすることで ESA で生じるフォトダークニングが抑制され高い変換効率が維持された。

本節では 813 nm によるフォトダークニング抑制効果について詳しく調べた。

3.6.1. 813 nm でのフォトブリーチング効果

前節までで、フォトダークニングが不十分であることがわかり、更なるフォトダークニングの抑制必要であると判明した。フォトンエネルギーの高い青色でフォトブリーチングすることも可能だが、 Tm^{3+} の吸収があるために現在得られている 1 W 以上の出力が実現できるかどうかわからない。そのため、新しい波長の導入するのではなく信号光の 813 nm に着目した。

最初に、813 nm のフォトブリーチング効果について調べた。信号光である 813 nm でフォトブリーチングの効果がみられたのでフォトブリーチング前後の白色光スペクトルの変化を測定した（分解能 5.0 nm）。使用した白色光はパワーを減衰した SC 光(SC-5, YSL photonics)を使用し、透過光のスペクトルは光スペクトラムアナライザ（AQ6374: 横河計測株式会社）で測定した。使用した Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバは添加濃度 5000 ppm、長さ 48 cm、コア径 4.5 μm であり両端面は 8°研磨されている。このファイバを入射パワー 2.5 W(1050 nm)で 1 分間励起した。このとき信号光 813 nm は入射していない。図 3.35 に透過光スペクトルを示す。青色のスペクトルは励起前の透過光スペクトル、水色はフォトダークニング後のスペクトルをあらわす。これより、フォトダークニングによって可視から近赤外にかけて光が吸収されていることが確認できる。そして次に前節の系で構成された MOPA によって 813 nm を増幅し、出力された 150 mW の光をフォトダークニングしたファイバに 10 分間入射してフォトブリーチングした。フォトブリーチングした後の SC 光透過スペクトルは赤色（図 3.35）で示されている。この結果から 813 nm にフォトブリーチングの効果があることがわかった。一般的にフォトダークニングによる損失は短波長の方が大きい図 3.35 では 550 nm

あたりの損失が小さくなっている。これは 1060 -1070 nm の光のゴースト（2次回折光）でありフォトダークニングによる損失ではない。そのため、600 nm 以下の領域については光スペクトルアナライザの雑音に埋もれてしまっているため不明である。

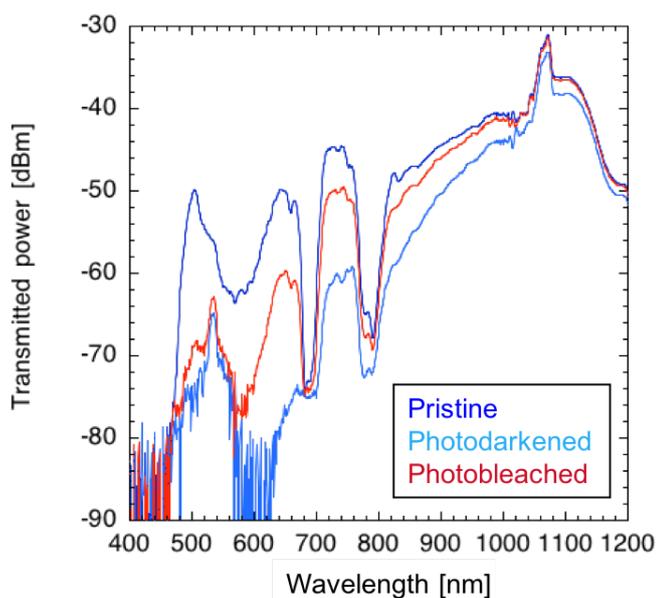


図 3.35 SC 光透過スペクトル（青:ダークニング前、水色:ダークニング後、赤:813 nm によるフォトブリーチング後）

3.6.2. カスケードファイバアンプ増幅動作時に生じるフォトダークニング効果

ここでは、カスケード MOPA 増幅実験時にフォトダークニングで生じる損失を白色光透過スペクトルで評価した。

白色光にはパワーを減衰させた SC 光源(SC-5, YSL photonics)を用いた。

まず、カスケード MOPA（フォトブリーチング無し）のフォトダークニングによる損失の変化を SC 光透過スペクトルで測定し、その後フォトブリーチングを行い、再度 SC 光透過スペクトルを測定した。この測定によって、フォトダーク

ニングによって生じた損失がフォトブリーチングで完全に元に戻るかどうか調べた。透過光スペクトルは光スペクトラムアナライザ（AQ-6315A: 安藤電気株式会社）を用いて分解能 2.0 nm で測定した。

カスケード MOPA の構成を図 3.36 に示す。使用した Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバ（ファイバーラボ（株））は添加濃度 15000 ppm、コア径 4.6 μm 、長さ 100 cm、NA=0.12 のフォトダークニングしていない Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバであり、片側がシリカファイバ（780HP）と機械的に 1dB 以下の損失で結合されている（Mechanical splice）。信号光はプリアンプで増幅され、約 100mW のパワーが利得ファイバに入射される。励起用レーザー（YbFL）で後方からコア励起した。 Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバの励起光側端面（フェルールで固定された ZBLAN ファイバ）はこれまでと同様に無酸素銅のジグで固定されている。増幅されたパワーはパワーメータ（S314C、Thorlabs, Inc.）で測定し、増幅動作が正常に行われていることを確認した。

まず、増幅実験前に 813 nm（100 mW）と 532 nm（200 mW）を入射して透過光スペクトルが変化するか調べたが、SC 光透過スペクトルが変化しないことを確認した。つまり、813 nm や 532 nm ではファイバの損失が変化しないことを確認できた。

フォトブリーチングはこれまでと同様に DPSS レーザー（SDL-532-800T : Shanghai Dream Lasers Technology Co., Ltd）を用いた。

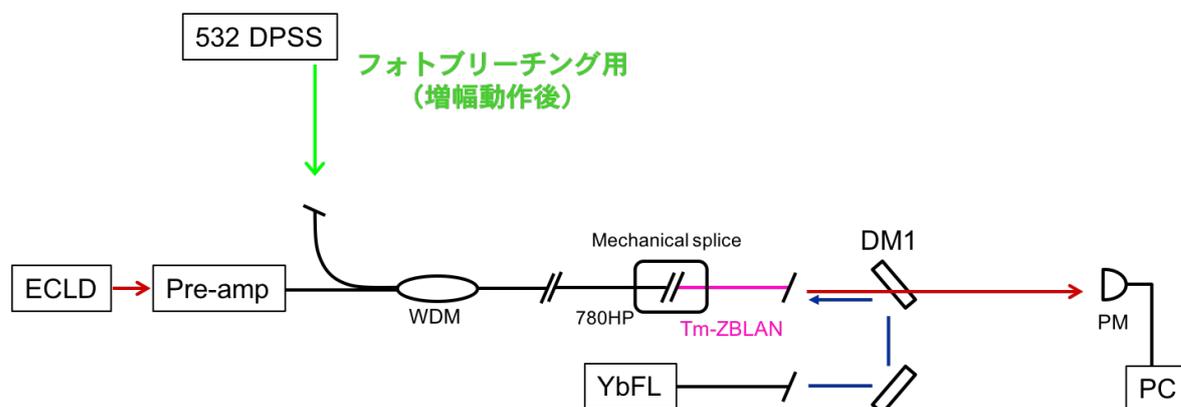


図 3.36 カスケード MOPA の増幅実験とフォトブリーチング

最初に、SC 光源のスペクトルを測定した（図 3.37：水色）。そして次に、フォトダークニングされていないフレッシュなファイバの SC 光透過スペクトルを測定した（図 3.37：青色）。その後 1.5 W 入射励起パワーで 2 分間増幅動作し、SC 光透過スペクトルを測定した（図 3.37：緑色）。この結果より、増幅実験によってフォトダークニングが生じていることがわかる。そしてその後、532 nm の

DPSS レーザー（入射パワー：100 mW）でフォトブリーチングを行い、再度 SC 光透過スペクトルを測定した結果が赤色のスペクトルである。この結果より 1.5 W の増幅動作で生じたフォトダークニングを損失は 100 mW の 532 nm を入射することでダークニング前の状態に戻ることが確認できた。

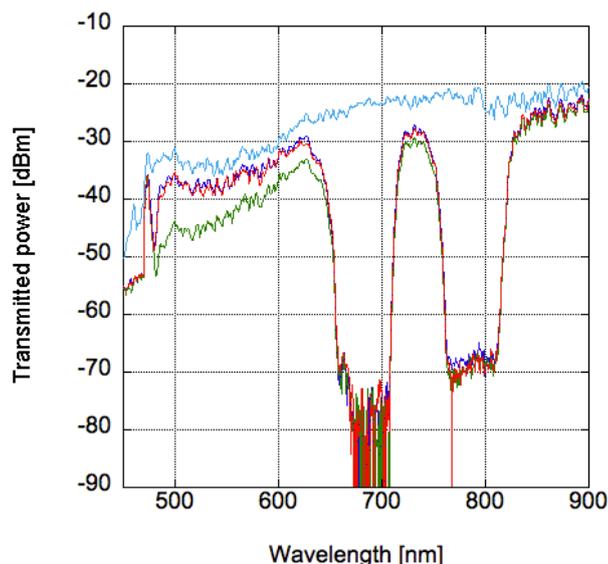


図 3.37 カスケード MOPA の動作（1.5 W 励起）による SC 透過光スペクトルの変化（水色：SC 光源、青：ダークニング前、緑：増幅後、赤：フォトブリーチング後）

ダークニング前の状態に戻ることが確認できたので、次に入射励起パワーを 2.5 W にして同様の実験を行なった。使用したファイバは入射励起パワー 1.5 W 時と同じファイバである。その結果を 3.38 に示す。入射励起パワー 1.5 W 時と同様に 2 分間増幅動作した後の SC 透過光を測定し、そのあと 100 mW の 532 nm でフォトブリーチングした後同様に SC 透過光スペクトルを測定した。2.5 W 励起時では 1.5 W 時よりもフォトダークニングによる損失が大きいが、1.5 W 時と同様に 532 nm のフォトブリーチング（2 分間）でフレッシュな時と同程度の SC 透過光スペクトルまで戻ることが確認できた。フォトブリーチングを同時に行いながら同様の実験を行なった場合も 2 分間の増幅動作ではフォトダークニングによる損失の増加は見られなかった。

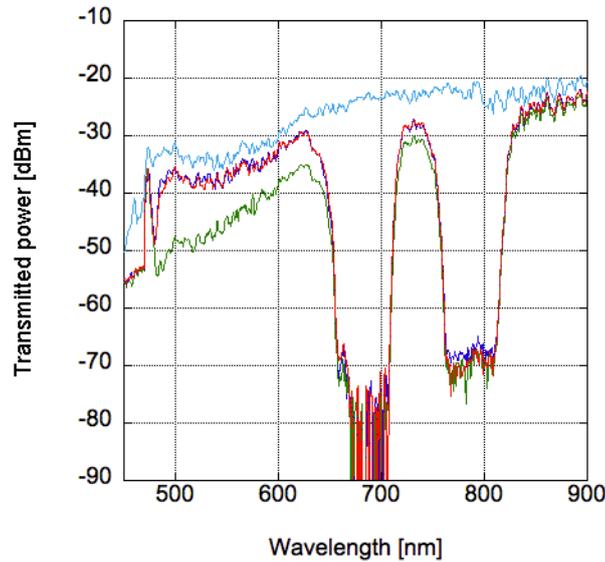


図 3.38 カスケード MOPA の動作 (2.5 W 励起) による SC 透過光スペクトルの変化 (水色: SC 光源、青: ダークニング前、緑: 増幅後、赤: フォトブリーチング後)

この実験より、カスケード MOPA (入射信号光パワー: 100 mW) において 2.5 W の入射励起パワーで 2 分程度の増幅する実験ならば生じたフォトダークニングの損失はフォトブリーチングによって取り除くことができるとわかった。次項では、念のためシリカファイバと機械的結合した新しい Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用意し、様々な信号光パワーで増幅実験を行なった。

以上の実験から以下のことがわかった。

- i 入射励起パワー 1.5 W、2.5 W 時のカスケード MOPA 増幅実験時にフォトダークニングで生じる損失は 532 nm のフォトブリーチングで完全に損失が回復する

3.6.3. 信号光パワーに対するダークニングによる損失の時間変化

ここでは、信号光パワーのフォトダークニング抑制効果を定量的に評価するために 520 nm 光の透過パワー時間変化を測定した。実験系の概略図を図 3.39 に示す。この実験系において、DM1 はショートパスダイクロイックミラー、DM2 はロングパスダイクロイックミラー、PM はパワーメーター、PD はフォトディテクタ、WDM は 532 nm と 813 nm を合波する WDM ファイバカップラ、LD(520 nm) は WSLD-520-001-K(Wavespectrum Laser. Inc.)を用いた。この構成において入

射励起パワー0.5 Wで増幅動作したときの520 nmの透過パワー時間変化を測定する。増幅動作するとフォトダークニングによって520 nmの透過パワーが減少するので、その時間変化をフォトディテクタで測定する。520 nmの入射パワーが大きいと520 nmでフォトブリーチングされてしまうので入射パワーはウェッジを用いて入射パワーを減らし約20 μ Wで実験を行なった。増幅動作すると813 nmの増幅された光がフォトディテクタで受光されてしまい520 nmのパワー変化が測定できないため、ロックインアンプ(図3.39中のLIA)を用いて520 nmのパワー変化を測定した。メカニカルチョッパーで520 nmの光を2.2 kHzで変調しロックインアンプ(5610B: 株式会社エヌエフ回路設計ブロック)を用いて変調周波数で復調することで813 nmの増幅光に埋もれることなく520 nmの受光パワーをDC電圧として測定できる。LIAで測定された520 nmの電圧信号の時間変化はPCで取り込んだ。増幅された813 nmのパワー変化を同時に測定することで、正常に増幅動作が行われていることを確認しながら実験を行なった。使用したTm³⁺添加ZBLANファイバは添加濃度15000 ppm、コア径4.6 μ m、長さ100 cm、NA=0.12のフォトダークニングしていないファイバであり、シリカファイバ(780HP)と1 dB以下の損失で機械的に結合されている。PCでは0.5秒ごとに電圧値が測定される。

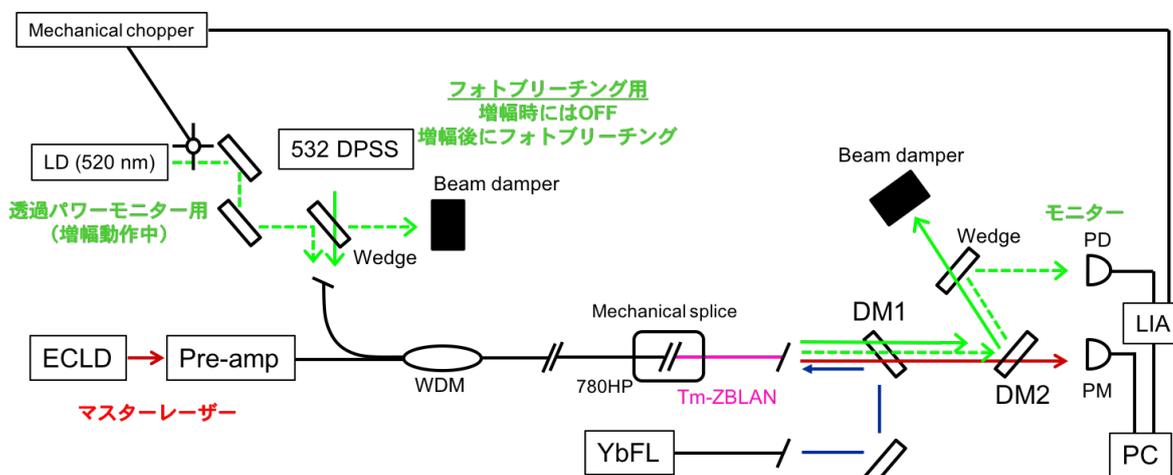


図 3.39 ロックインアンプを用いたフォトダークニング測定系概略図

励起パワーを強くしすぎると520 nmの透過パワーがPDで正確に測定できないほど小さくなるので、増幅動作は6通りの信号光パワーに対して励起パワー0.5 W(入射パワー)で実験を行なった。

実験手順は、

①フォトブリーチングしていない状態で、ある信号光パワーにおける増幅動作時（入射励起パワー：0.5 W）のフォトダークニングによる損失時間変化を測定（2分間）

②DPSS レーザーを入射しフォトブリーチングしながら増幅動作し増幅パワーを測定（1分間）

③励起を止め 532 nm の DPSS レーザーでフォトブリーチングを行う（1分間）

④フォトブリーチングを止め PD で受光される 520 nm の電圧値が増幅動作前の値に戻っていることを確認し信号光のパワーを変える

という流れで実験を行なった。

増幅動作時に PC で取り込まれた電圧を 1 とした 520 nm 透過光パワー時間変化を図 3.40 に示す。増幅実験が開始されると 520 nm における損失が時間とともに上昇していることがわかる。赤が入射信号光パワー14mW、青が 27 mW、緑が 49 mW、橙が 69 mW、水色が 92 mW、紫が 105 mW の時の結果である。そしてそれぞれストレッチド指数関数でフィッティングを行なった。ストレッチド指数関数

$$-10\frac{1}{L}\log\left(\frac{P(t)}{P_0}\right) = \alpha\left[1 - \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau}\right)^\beta\right)\right] \quad (3.1)$$

を用いて良い近似でフィッティングできており(最小二乗法： $R^2 > 98.7\%$)、それぞれのフィッティングパラメータを表 3.9 にまとめた。フォトブリーチングを行いながら増幅動作させた時の信号光パワーに対する増幅パワーと利得を図 3.41 に示す。図 3.41 の結果より 100 mW くらいの信号光パワーで増幅パワーが飽和し、利得も減少していることがわかる。

次に、信号光パワーに対する α （予想される定常状態の損失）を図 3.42 に示す。信号光に対して逆関数(1/x)の形で定常状態の損失が減少している事から、フォトダークニングが反転分布に依存すると言える。これまで Tm^{3+} 添加ファイバのフォトダークニングが ESA によって生じると報告されているが、まさにそのメカニズムを支持する結果が得られた。また、この結果から信号光の入射パワーの大きくする事でフォトダークニングによる損失を劇的に低減できることもわかった。図 3.42 のようなフォトダークニングによって生じる損失の信号光パワー依存性については、これまで報告されておらず本研究によって初めて実験的に明らかとなった。

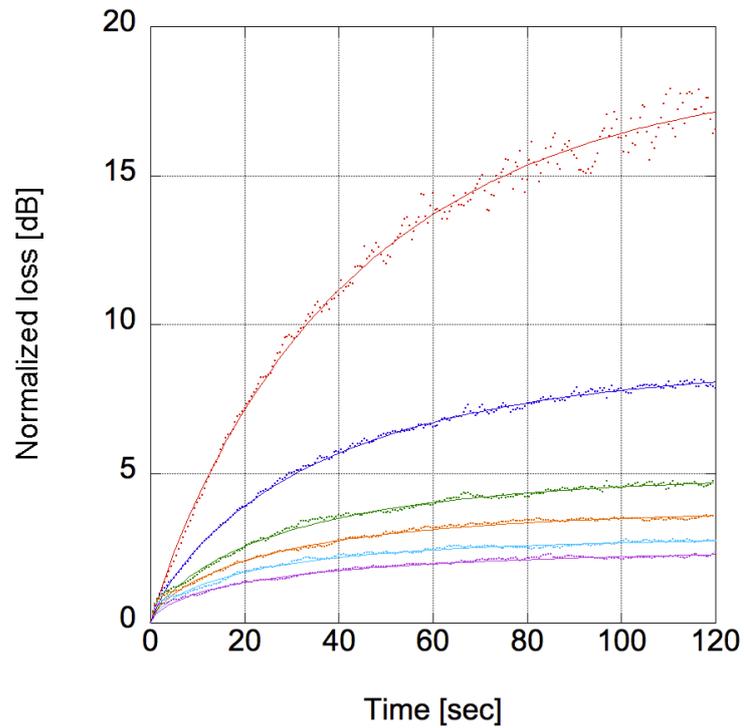


図 3.40 様々な信号光パワーにおけるフォトダークニングによる損失時間変化(520 nm)
 (赤：14 mW、青：27 mW、緑：49 mW、橙：69 mW、水色：92 mW、紫：105 mW)

表 3.9 ストレッチド指数関数でフィッティングした時のパラメータ

入射信号光パワー[mW]	α	τ (sec)	β
14	18.66	44.12	0.9206
27	8.722	37.09	0.8189
49	5.029	31.09	0.7479
69	3.856	28.35	0.7008
92	2.898	23.58	0.6767
105	2.557	30.83	0.6115

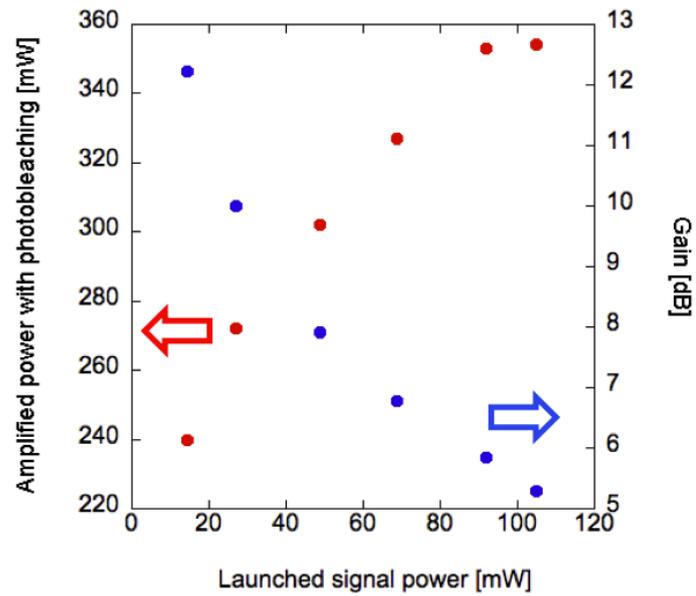


図 3.41 フォトブリーチングしながら増幅動作させた時の入射信号光パワーに対する増幅パワー（赤）と利得（青）

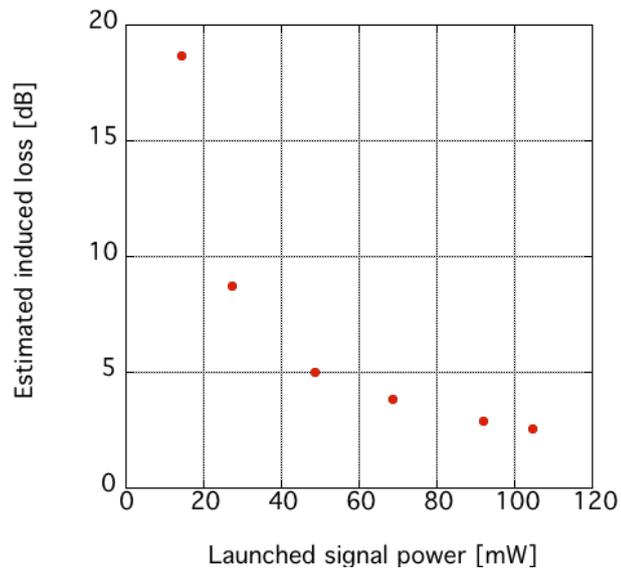


図 3.42 信号光の出力に対するフィッティングパラメータ α

次に、信号光の入射パワーに対する β と τ について図 3.43 に示す。
 β は信号光のパワーに対して減少し、ダークニングレートについては増加し

ていることがわかる。しかし β については0.3~0.7くらいの値をとり、ファイバの組成や濃度、NAそして温度によって変化することが知られており[82], [83], [90], [141], [142]、今回の実験はそのどれにも当てはまらない。また、測定時間によって β や τ の値が減少することも報告されており[78]、今回の結果では信号光のパワーが低い場合に定常状態に落ち着くまで測定できていない事が原因で図3.43のように β が減少しダークニングレートが上昇したと考えられる。そして、その中でも信号光のパワー105 mWの時は十分定常状態に落ち着くまで測定できている。したがって、信号光のパワー105 mW以外の結果についてはストレッチドエクスポネンシャルのフィッティングでは定量的に評価できない。そこで、立ち上がり部分（0秒から5秒）のデータをエクスポネンシャル $\Delta\alpha = A\left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)\right)$ で最小二乗法によりフィッティングした($R^2 > 98.0\%$)。図3.44に0秒から5秒までのフィッティング結果を示す。そして、次にフィッティングから得られた時定数 τ について図3.45に示す。図3.45の結果より、信号光の入射パワーの増加に従って時定数が減少し変化が小さくなっていくことがわかった。この時定数変化の結果と予想される定常状態の損失(図3.42)の両方が減少している事から、フォトダークニングによるカラーセンター形成率が減少していると言える[143]。また信号光の入射パワーが40 mWを超えたあたりで両方とも変化が小さくなっており、カラーセンター形成率の変化も小さくなったと言える。

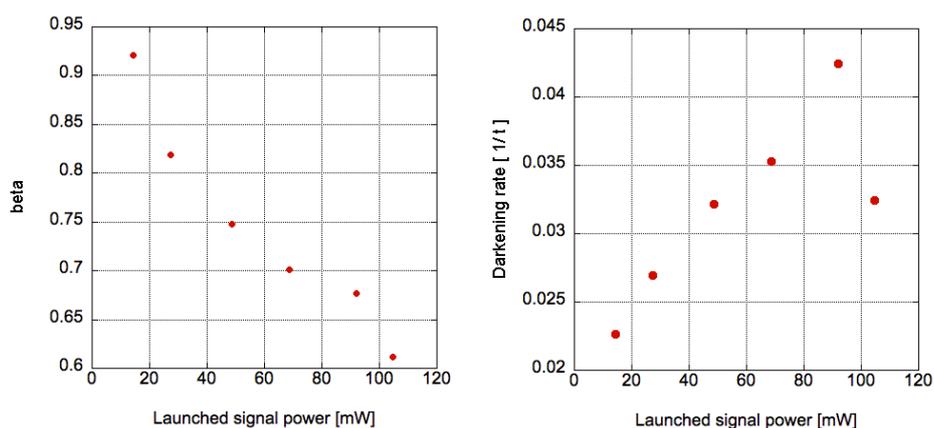


図 3.43 入射信号光パワーに対する β (左) とダークニングレート (右)

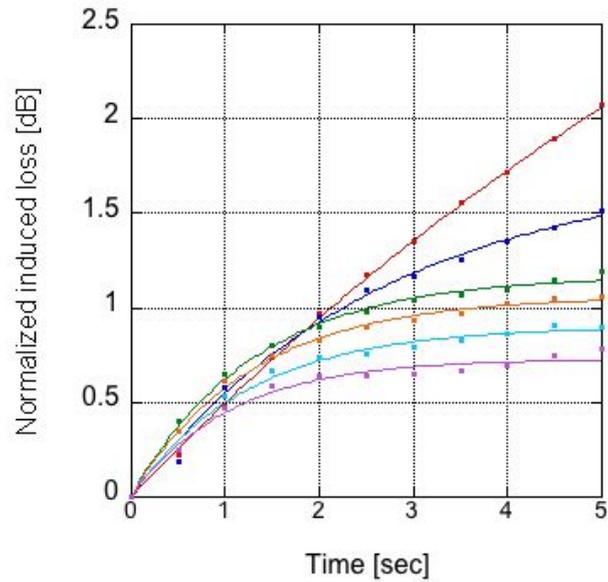


図 3.44 フォトダークニングによる損失の時間変化（立ち上がり部分）
 (赤：14 mW、青：27 mW、緑：49 mW、橙：69 mW、水色：92 mW、紫：105 mW)

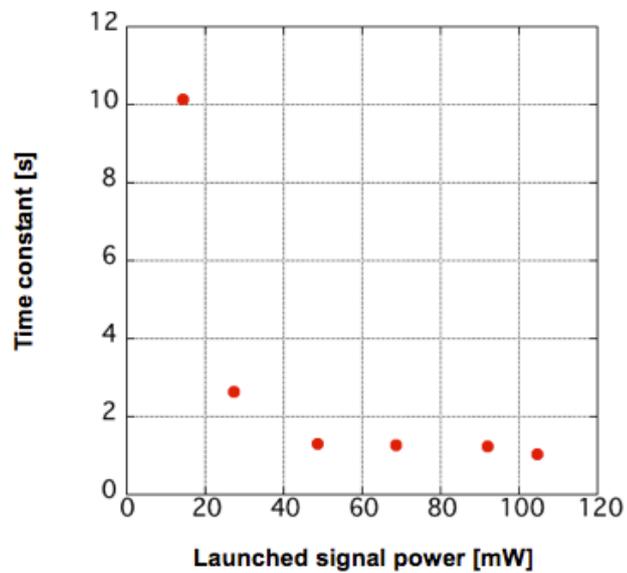


図 3.45 信号光の入射パワーに対する時定数 τ
 (0~5秒をエクスポネンシャルでフィッティングした場合)

増幅出力である 813 nm の出力時間変化とそのフォトダークニングによる損失 (813 nm) の時間変化を図 3.46、図 3.47 に示す。

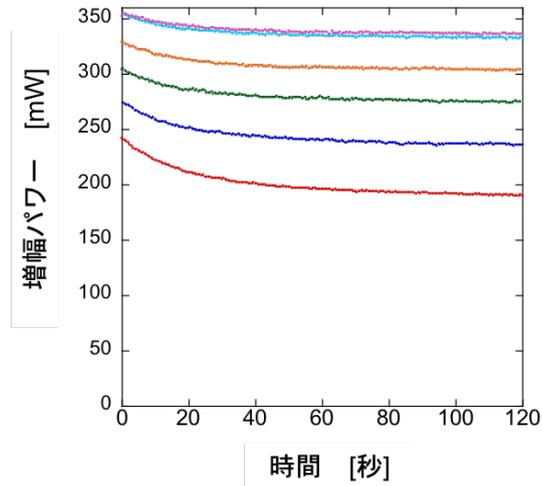


図 3.46 様々な信号光パワーにおける増幅出力の時間変化
 (赤：14 mW、青：27 mW、緑：49 mW、橙：69 mW、水色：92 mW、紫：105 mW)

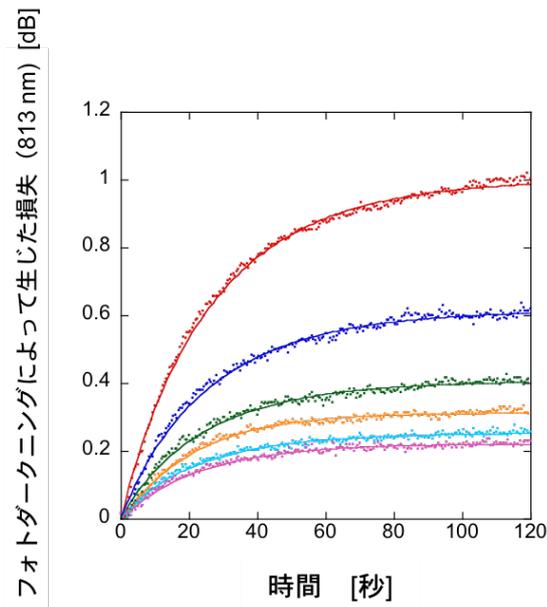


図 3.47 様々な信号光パワーにおける損失の時間変化 (813 nm)
 (赤：14 mW、青：27 mW、緑：49 mW、橙：69 mW、水色：92 mW、紫：105 mW)

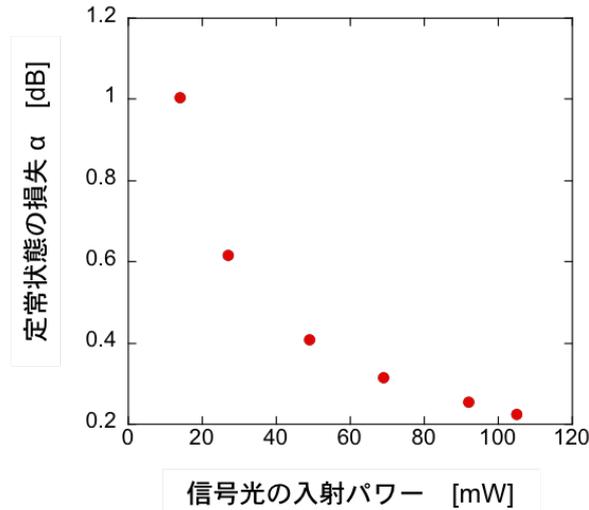


図 3.48 信号光の入射パワーに対する α (813 nm)

図 3.47 の直線はストレッチドエクスポネンシャルでフィッティングを行った ($R^2 > 98.1\%$)。フィッティングによって得られたフィッティングパラメータ α については図 3.48 に示した。この結果より、813 nm においてもフォトダークニングの抑制が行われたと言える。そして約 80 mW 以上の信号光の入射パワーで増幅を行うことで 813 nm における損失を 0.3 dB 以下にまで抑制できることがわかった。

これらを踏まえ、以下のようなプロセスで Tm^{3+} 添加ファイバのフォトダークニングが生じていると考えられる (図 3.49)。この図のように Tm^{3+} の ESA によって Tm^{3+} 近傍の配位子から電子が放出されもともと存在していた欠陥などにトラップされる。その際に配位子は電子を放出したためホールが形成される。これら電子やホールによってカラーセンターが形成され可視光など広い波長範囲の光を吸収する。そして、熱や光などで活性化された電子、ホールが再結合する事でブリーチングされる。そしてダークニングとブリーチングの単位時間あたりの発生確率が釣り合うと定常状態になる。今回の実験の場合、ブリーチングについては信号光の 813 nm と Tm^{3+} の発光によるフォトブリーチングが生じていると考えられる。増幅に使用している 813 nm でのフォトブリーチング効果については前述したが、他にも 1G_4 からの発光によってブリーチングされることも知られている [110], [144]。信号光のパワーの増加によって、図 3.42 と図 3.48 の α が大きく減少している事から反転分布の減少によって ESA が抑制されカラーセンターの形成率が小さくなった結果フォトダークニング効果が抑制されたと考え

られる。

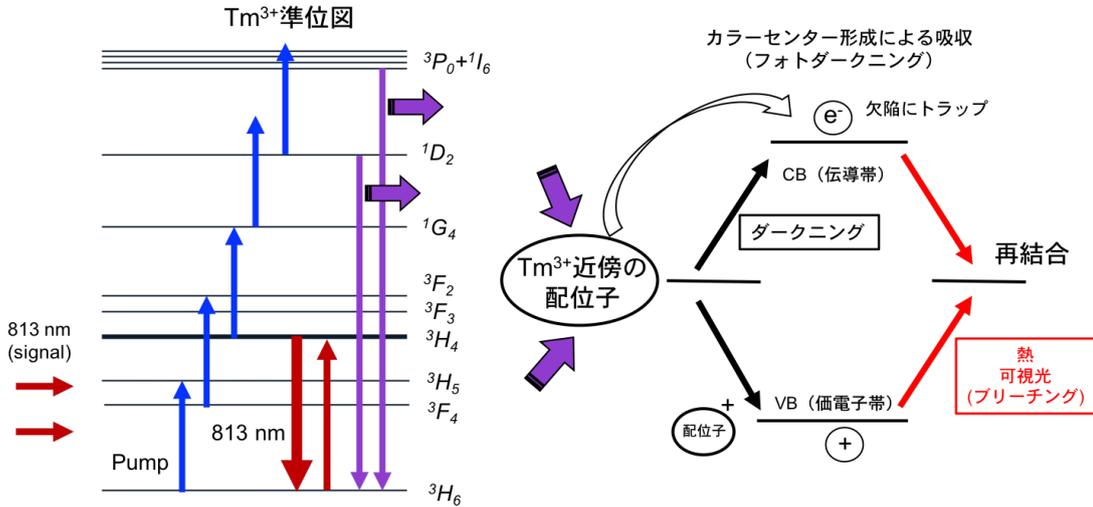


図 3.49 Tm³⁺添加ファイバのフォトダークニングのモデル概略図

3.6.4. 813 nm によるフォトダークニング抑制効果のまとめ

前節までの実験より、プリアンプを用いて信号光パワーを向上することでフォトダークニングの抑制と SN 比の向上が可能になることがわかった。そして次に MOPA システムの最適化のために信号光パワーのフォトダークニング抑制について調べた。入射励起パワー 0.5 W 時で実験を行い信号光のパワーを変えて励起した時の 520 nm の透過パワーの時間変化を測定することで定量定期的に評価した。その結果、フォトダークニングによる損失が信号光パワーに対して逆関数的に減少することがわかった。このように信号光の入射パワー増加によって ESA を抑制する事でフォトダークニングを抑制できる事が明らかになった。これまで Tm³⁺添加ファイバのフォトダークニングが ESA に依存 (反転分布依存) する事が報告されており、本結果でも同じプロセスに則った結果となった。また本実験で信号光の入射パワーの増加によってフォトダークニングの抑制効果を定量的に評価したが、これまでに同様な実験を行なった報告は無く、本研究によって初めて実証され新しいフォトダークニング抑制手法として期待される。本研究では、励起パワー 0.5 W 時では 80 mW 以上の信号光パワーで 813 nm の増幅出力の減少を 0.3 dB 以下に抑える事が可能だと明らかになった。他の励起パワーで

も同様な実験を行う事でフォトダークニングを抑制しながら 1 W 以上の増幅をフォトブリーチング無しで実現できるときたされる。また、ESA の抑制は信号光の入射パワーの増加に伴う誘導放出遷移率の向上によって実現されている。すなわち、信号光の入射パワーによるフォトダークニングの抑制は同時に ASE の抑制も期待できるため高い SNR も実現される。本研究のように高い SNR を必要とするファイバアンプではより多段のカスケードアンプにする事で ASE を抑制とフォトダークニングの抑制を同時に行う必要がある。このように MOPA 構成を最適化する事で低雑音かつ安定高出力可能なレーザー光源の開発を実現し Sr 光格子時計への導入が期待される。

4. まとめと展望

4.1. まとめ

本論文で、Sr 光格子時計の新しい光格子用レーザー光源開発として Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いた 813 nm 高出力増幅器の開発とその際に問題となるフォトダークニングの抑制について要素技術の確立を行なった。

添加濃度によってフォトダークニングの影響が異なることがわかっていたため、2通りの添加濃度の Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバで増幅動作を評価した。1つは 5000 ppm、もう一方は 15000 ppm のファイバである。

5000 ppm の添加濃度のファイバを用いた MOPA では、1 μm 帯で励起すると変換効率が大変低く高出力動作できないため 2 波長励起により高効率化な増幅を行なった。さらに、フォトダークニングを抑制するために 532 nm によるフォトブリーチングも同時に行った。フォトブリーチングを行いながら 1050 nm と 1220 nm の 2 波長でコア励起することで 1.95 W の増幅パワーを 48% のスロープ効率で実現できた。810 nm 帯のファイバ増幅器では世界最高の出力を達成し、本手法が高出力光源にとって有用であることやフォトブリーチングが効果的であることを示せた。また、実験から最適な励起パワー比を測定し同程度の励起率を持つ時に最大の変換効率(50%)が得られることがわかった。

次に、15000 ppm の添加濃度のファイバによる MOPA で実験を行なった。15000 ppm の場合、 Tm^{3+} イオン間のエネルギー移動で励起がアシストされるため 1 波長で高効率に励起されると考えられた。そこでフォトブリーチングを同時に行いながら 1 波長励起(1050 nm)で増幅実験を行った結果、2 波長励起時と同程度の高いスロープ効率を安定して得られることがわかった。これらの実験から安定高出力化のためにはフォトダークニングの抑制が極めて重要であることがわかった。

5000 ppm と 15000 ppm の 2 種類の手法を比較すると 15000 ppm の方がシンプルであるため小型・堅牢化に適しており、さらに電力変換効率も高いため目的である可搬型 Sr 光格子時計用光格子用レーザーに適している。そのため、15000 ppm のファイバを用いた 1 波長励起を軸として実験を進めた。

次に、ASE の抑制やフォトダークニング抑制、そして高出力化を目的としてカスケードアンプを構築した。その結果 50 dB 以上の高い SNR が得られ、そし

て 1 W 以上の出力で 1 日以上連続動作させることにも成功した。

以上の増幅動作（ブリーチングあり）を表 5.1 にまとめた。表 5.1 からカスケードアンプで最も良い性能になったことは明らかである。

表 4.1 増幅実験のまとめ

	2 波長励起 MOPA (5000 ppm)	1 波長励起 MOPA (15000 ppm)	カスケードアンプ (15000 ppm)
最大増幅パワー	1.95 W	1.35 W	1.5 W
スロープ効率	48%	45%	50%
電力変換効率	0.05 %	0.68%	0.60%
SNR	35 dB	40 dB	50 dB
動作時間	2 分	23 分	120 分

最後に、信号光の入射パワーとフォトダークニングの関係を調べた。その結果、 Tm^{3+} 添加ファイバのフォトダークニングがこれまでに報告されているように ESA に依存することを実証する新しい結果が得られた。本実験結果のように信号光を大きくする事でフォトダークニングを抑制する手法は新しいフォトダークニング抑制手法として有効であり、フォトダークニングが問題となるファイバアンプ開発にとって有用である。こういった事を考慮してカスケードアンプを最適化する事でフォトダークニングと ASE の両方が抑制でき、高 SNR や安定高出力化が期待できる。

他の光格子用レーザーと比較した結果を表 4.2 に示す。出力については飽和も見られていないので 2 W 以上の出力が実現できるため、他の光格子用レーザーと比較しても遜色無い。SNR については半導体 MOPA よりも高い値が得られた。まだ改善の余地がありチタンサファイアレーザーほど高い SNR の実現は大変難しいが 55 dB 以上の SNR は実現できると期待される。ビーム品質についてはシングルモードファイバを用いているため他の光格子用レーザーと比較して最も良い。電力変換効率については 1%程度まで改善の余地があると思われる。従って半導体 MOPA よりも高い値は難しいと思われる。サイズについてはファイバを用いているため十分小型なシステムが可能である。以上をまとめると、光学的な性能についてはチタンサファイアレーザーを超えることは難しいが半導体 MOPA よりも優れた光源ができたと言えるが 18 桁の精度を得るには 80 dB 以上の SNR が必要のため 18 桁は本研究の光格子用レーザーでは実現できない[121]。一方で大きさや電力変換効率など光学以外の部分ではチタンサファイアレーザーより優れた光源であるといえる。従って 18 桁未満の精度を持った可搬・小型

な Sr 光格子時計の開発であれば有用な光源だと言えよう。

表 4.2 本研究で開発した光源と他の光格子用レーザーとの比較

	チタンサファイアレーザー	半導体 MOPA	カスケードアンプ
出力	> 2 W[120]	2 W[121]	1.5 W
SNR	>89 dB[121]	~ 40 dB[121]	>50 dB
ビーム品質	$M^2 < 1.1$ [120]	$M^2 < 2$ [122]	$M^2 \sim 1.1$
電力変換効率	~0.3%* ¹	~ 5%* ²	0.60%
システム	大型	小型	小型

*1: 励起パワー10 W(Verdi(G10), coherent, 消費電力:700 W)で 2W 出力する事から算出 [121], [123]、チラーは含まれていない

*2: BoosTA pro の諸費電力:40 W から算出[121], [122]

Sr 光格子時計用光格子用レーザーとしては数ヶ月のメンテナンスフリーな光源が求められる。その領域にはまだ達していないが、現在メインアンプの入射系を溶接で固定するアセンブリを進めている。このアセンブリによって MOPA の小型化、そして安定動作が期待される。さらに、このアセンブリには仏リン酸ガラスがエンドキャップとして施された ZBLAN ファイバを使用するため、水蒸気など環境由来のファイバの劣化も抑制できると期待される。そして、数ヶ月の安定動作が実現されると思われる。

4.2. 展望

本研究の目的は Sr 光格子時計用光格子用レーザーの開発であった。波長、出力、周波数線幅、ビーム品質などの要求値は達成され、1 日以上長期動作も実現された。Sr 光格子時計用の光格子用レーザーとしては数ヶ月以上メンテナンスフリーの光源が求められている。しかし、ZBLAN ファイバは空気中の水分と反応してしまうため、数ヶ月といった長時間動作した場合には問題が生じる可能性がある。アライメントのずれによる長期動作の限界については、励起光入射部のオプティクスが溶接によって固定されたモジュールを使用する事で大幅に改善されると考えられる。さらに、水分との反応による問題についてはエンドキャップつき Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバを用いる事で対策する。この新しいモジュールとエンドキャップについては現在進行中であり、数ヶ月以上の長期安定動作も可能になると期待される。

本研究で開発した光格子用レーザーを Sr 光格子時計に導入する事で小型化や長期安定動作について大きく前進すると考えられる。そしてゆくゆくはメンテナンスフリーや衛星搭載型の Sr 光格子時計の開発によって重力波の測定などへの応用も期待される[145]。

本研究では 532 nm や信号光でフォトダークニングを抑制しながら増幅する手法を行なったが、この手法は Tm^{3+} の持つ青色や紫外を用いたレーザー光源にも応用することができる。また、様々なレーザーシステムでフォトダークニングやフォトブリーチングについてより詳細に調べる事で現在未解明なフォトダークニングやフォトブリーチングの解明に近づくだらう。

新しい Sr 光格子時計用光格子用レーザー開発を目的として Tm^{3+} 添加 ZBLAN ファイバ増幅器を開発したが、810 nm 帯のファイバ増幅器は精密分光、医療、LIDAR など様々な応用も考えられる。さらに、810 nm 近辺は LD の開発技術が進んでいるため広く普及しており、フォトディテクタの感度が高く LD の価格も比較的安価である。そういった意味でも 810 nm 帯でビーム品質の良いファイバ増幅器ができた事によりアプリケーションの幅が広がる可能性を持っている。今後 Sr 光格子時計に限らず様々な用途で利用され、技術の発展に貢献してくだらうと思われる。

引用文献

- [1] P. Delva, H. Denker, and G. Lion, “Chronometric Geodesy: Methods and Applications,” in *Relativistic Geodesy: Foundations and Applications*, D. Puetzfeld and C. Lämmerzahl, Eds. Cham: Springer International Publishing, 2019, pp. 25–85.
- [2] S. B. Koller *et al.*, “Transportable Optical Lattice Clock with 7×10^{-17} Uncertainty,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 118, no. 7, Feb. 2017.
- [3] M. Musha, J. Miura, K. Nakagawa, and K. Ueda, “Developments of a fibre-MOPA system for the light source of the gravitational wave antenna,” *Class. Quantum Gravity*, vol. 23, no. 8, pp. S287–S292, 2006.
- [4] Y. Jeong *et al.*, “Power Scaling of Single-Frequency Ytterbium-Doped Fiber Master-Oscillator Power-Amplifier Sources up to 500 W,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 13, no. 3, pp. 546–551, 2007.
- [5] M. Gilowski *et al.*, “Narrow bandwidth interference filter-stabilized diode laser systems for the manipulation of neutral atoms,” *Opt. Commun.*, vol. 280, no. 2, pp. 443–447, 2007.
- [6] J. Labaziewicz, P. Richerme, K. R. Brown, I. L. Chuang, and K. Hayasaka, “Compact, filtered diode laser system for precision spectroscopy,” *Opt. Lett.*, vol. 32, no. 5, pp. 572–574, 2007.
- [7] D. J. Thompson and R. E. Scholten, “Narrow linewidth tunable external cavity diode laser using wide bandwidth filter,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 83, no. 2, p. 23107, Feb. 2012.
- [8] M. Bernier *et al.*, “Bragg gratings photoinduced in ZBLAN fibers by femtosecond pulses at 800 nm,” *Opt. Lett.*, vol. 32, no. 5, pp. 454–456, 2007.
- [9] G. Bharathan, R. I. Woodward, M. Ams, D. D. Hudson, S. D. Jackson, and A. Fuerbach, “Direct inscription of Bragg gratings into coated fluoride fibers for widely tunable and robust mid-infrared lasers,” *Opt. Express*, vol. 25, no. 24, pp. 30013–30019, 2017.
- [10] V. Fortin, F. Jobin, M. Larose, M. Bernier, and R. Vallée, “10-W-level monolithic dysprosium-doped fiber laser at 3.24 μm ,” *Opt. Lett.*, vol. 44, no. 3, pp. 491–494, 2019.
- [11] S. Cozic, S. Boivinet, C. Pierre, J. Boulet, S. Poulain, and M. Poulain, “Splicing fluoride glass and silica optical fibers,” *EPJ Web Conf.*, vol. 215, 2019.

- [12] Z. Zheng *et al.*, “Scaling all-fiber mid-infrared supercontinuum up to 10 W-level based on thermal-spliced silica fiber and ZBLAN fiber,” *Photonics Res.*, vol. 4, no. 4, pp. 135–139, 2016.
- [13] Y. O. Aydin, V. Fortin, F. Maes, R. Vallée, and M. Bernier, “Long-term Operation of High-power 3 μm Fiber Lasers,” in *Laser Congress 2019 (ASSL, LAC, LS&C)*, 2019, p. AW4A.7.
- [14] C. A. Schäfer *et al.*, “Fluoride-fiber-based side-pump coupler for high-power fiber lasers at 2.8 μm ,” *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 10, pp. 2340–2343, 2018.
- [15] Y. O. Aydin, V. Fortin, R. Vallée, and M. Bernier, “Towards power scaling of 2.8 μm fiber lasers,” *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 18, p. 4542, 2018.
- [16] F. Maes, V. Fortin, M. Bernier, and R. Vallée, “5.6 W monolithic fiber laser at 3.55 μm ,” *Opt. Lett.*, vol. 42, no. 11, pp. 2054–2057, 2017.
- [17] S. D. Jackson, “Towards high-power mid-infrared emission from a fibre laser,” *Nat. Photonics*, vol. 6, no. 7, pp. 423–431, 2012.
- [18] X. Zhu *et al.*, “Pulsed fluoride fiber lasers at 3 μm [Invited],” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 34, no. 3, pp. A15–A28, 2017.
- [19] X. Zhu and N. Peyghambarian, “High-power ZBLAN glass fiber lasers: review and prospect,” *Adv. Optoelectron.*, vol. 2010, 2010.
- [20] O. Henderson-Sapir, A. Malouf, N. Bawden, J. Munch, S. D. Jackson, and D. J. Ottaway, “Recent Advances in 3.5 μm Erbium-Doped Mid-Infrared Fiber Lasers,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 23, no. 3, May 2017.
- [21] M. Mollae *et al.*, “Single-frequency blue laser fiber amplifier,” *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 3, p. 423, 2018.
- [22] M. Mollae *et al.*, “Half-Watt Tm³⁺-Doped Fluoride Fiber Laser at 785 nm,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 30, no. 17, pp. 1563–1566, Sep. 2018.
- [23] M. L. Dennis, J. W. Dixon, and I. Aggarwal, “High power upconversion lasing at 810nm, in Tm: ZBLAN fibre,” *Electron. Lett.*, vol. 30, no. 2, pp. 136–137, 1994.
- [24] M. Juárez-Hernández and E. B. Mejía, “Red laser-diode pumped 806 nm Tm³⁺: ZBLAN fibre laser,” *Laser Phys. Lett.*, vol. 14, no. 6, Jun. 2017.
- [25] E. Mejia-Beltran, L. A. Zenteno, P. Gavrilovic, and A. K. Goyal, “High-efficiency lasing at 810 nm in single-mode Tm³⁺ doped fluorozirconate fiber pumped at 778 nm,” *Opt. Eng.*, vol. 37, no. 10, pp. 2699–2703, 1998.
- [26] K. Kohno, Y. Takeuchi, T. Kitamura, K. Nakagawa, K. Ueda, and M. Musha, “1 W single-frequency Tm-doped ZBLAN fiber MOPA around 810 nm,”

Opt. Lett., vol. 39, no. 7, p. 2191, Apr. 2014.

[27] M. Poulain, M. Poulain, and J. Lucas, “Verres fluores au tetrafluorure de zirconium proprietes optiques d’un verre dope au Nd³⁺,” *Mater. Res. Bull.*, vol. 10, no. 4, pp. 243–246, Apr. 1975.

[28] M. Digonnet, *Rare-Earth-Doped Fiber Lasers and Amplifiers*. 2001.

[29] 作花濟夫, *ガラス科学の基礎と応用*. 内田老鶴圃, 1997.

[30] P.W.France, M.G.Drexhage, J.M.Parker, M.W.Moore, J.V.Wright, *FLUORIDE GLASS OPTICAL FIBERS*. Blackie and Son Ltd, 1990.

[31] C. R. Day, P. W. France, S. F. Carter, M. W. Moore, and J. R. Williams, “Fluoride fibres for optical transmission,” *Opt. Quantum Electron.*, vol. 22, no. 3, pp. 259–277, 1990.

[32] S. Cozic, S. Boivinet, C. Pierre, J. Boulet, S. Poulain, and M. Poulain, “Splicing fluoride glass and silica optical fibers,” *EPJ Web Conf.*, vol. 215, p. 04003, 2019.

[33] K. Yin, B. Zhang, J. Yao, L. Yang, S. Chen, and J. Hou, “Highly stable, monolithic, single-mode mid-infrared supercontinuum source based on low-loss fusion spliced silica and fluoride fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 5, p. 946, 2016.

[34] C. A. Schäfer *et al.*, “Fluoride-fiber-based side-pump coupler for high-power fiber lasers at 2.8 μm,” *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 10, p. 2340, 2018.

[35] B. Szigeti, “Polarisability and dielectric constant of ionic crystals,” *Trans. Faraday Soc.*, vol. 45, pp. 155–166, 1949.

[36] 齊藤 博, 今井 和明, 大石 正和, 澤田 孝幸鈴木 和彦, 入門 固体物性 基礎からデバイスまで. 共立出版株式会社, 2010.

[37] M. M. Kozak, *Development of thulium-doped fluoride fiber amplifiers*. Cuvillier Verlag, 2005.

[38] 平尾 一之, 田中 勝久那須 弘行, 非晶質フォトニクス材料. 裳華房, 2003.

[39] J. S. Sanghera, L. B. Shaw, and I. D. Aggarwal, “Applications of chalcogenide glass optical fibers,” *Comptes Rendus Chim.*, vol. 5, no. 12, pp. 873–883, 2002.

[40] 岡本 勝就, “光導波路の基礎 (フォトニクスシリーズ) ,” コロナ社, 1992.

[41] 須藤昭一, Ed., エルビウム添加光ファイバ増幅器. オプトロニクス社, 2001.

[42] 小林 洋志, 発光の物理 (現代人の物理) . 朝倉書店, 2000.

- [43] P. F. Moulton *et al.*, “Tm-Doped Fiber Lasers: Fundamentals and Power Scaling,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 15, no. 1, pp. 85–92, 2009.
- [44] N. M. Al-Hosiny, R. El-Agmi, S. Abdallah, and M. Abdel-Aal, “Generation of Short Wavelength in Up-Conversion of Tm³⁺Doped Fluoride Glass and Its Application in Fiber Lasers,” *J. Mod. Phys.*, vol. 5, p. 123, Jan. 2014.
- [45] S. Guy, A. M. Jurdyc, B. Jacquier, and W. M. Meffre, “Excited states Tm spectroscopy in ZBLAN glass for S-band amplifier,” *Opt. Commun.*, vol. 250, pp. 344–354, Jun. 2005.
- [46] E. W. J. L. Oomen, “Up-conversion of red light into blue light in thulium doped fluorozirconate glasses,” *J. Lumin.*, vol. 50, no. 6, pp. 317–332, 1992.
- [47] X. Zhu and N. Peyghambarian, “High-power ZBLAN glass fiber lasers: Review and prospect,” *Adv. Optoelectron.*, vol. 2010, 2010.
- [48] 霜田 光一, “レーザー物理入門,” 岩波書店, 1992.
- [49] 多田 邦雄松本 俊, “電子情報通信学会編 光・電磁物性,” コロナ社, 2013.
- [50] A. Yariv, P. Yeh, 多田邦雄, and 神谷武志 監訳, “原書6版 ヤリヴ-イェー 光エレクトロニクス 基礎編,” 丸善株式会社, 2010.
- [51] S. D. Jackson, “Cross relaxation and energy transfer upconversion processes relevant to the functioning of 2 μm Tm³⁺-doped silica fibre lasers,” *Opt. Commun.*, vol. 230, no. 1–3, pp. 197–203, 2004.
- [52] J. Ganem, J. Crawford, P. Schmidt, N. W. Jenkins, and S. R. Bowman, “Thulium cross-relaxation in a low phonon energy crystalline host,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 66, no. 24, pp. 1–15, 2002.
- [53] T. Kasamatsu, Y. Yano, and T. Ono, “Laser-diode-pumped highly efficient gain-shifted thulium-doped fiber amplifier operating in the 1480-1510-nm band,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 13, no. 5, pp. 433–435, May 2001.
- [54] F. Roy, P. Baniel, C. Fages, J. J. Girard, A. Le Sauze, and D. Bayart, “Optimal pumping schemes for gain-band management of thulium-doped fiber amplifiers,” in *OFC 2001. Optical Fiber Communication Conference and Exhibit. Technical Digest Postconference Edition (IEEE Cat. 01CH37171)*, 2001, vol. 2, pp. TuQ7–TuQ7.
- [55] A. S. L. Gomes *et al.*, “Characterization of efficient dual-wavelength (1050 + 800 nm) pumping scheme for thulium-doped fiber amplifiers,” *IEEE*

Photonics Technol. Lett., vol. 15, no. 2, pp. 200–202, 2003.

[56] J. F. Martins-Filho, C. J. A. Bastos-Filho, M. T. Carvalho, M. L. Sundheimer, and A. S. L. Gomes, “Dual-wavelength (1050 nm + 1550 nm) pumped thulium-doped fiber amplifier characterization by optical frequency-domain reflectometry,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 15, no. 1, pp. 24–26, 2003.

[57] S. S. H. Yam, Y. Akasaka, Y. Kubota, H. Inoue, and K. Parameswaran, “Novel pumping scheme study for fluoride-based thulium-doped fiber amplifier at 690 nm,” *Opt. InfoBase Conf. Pap.*, pp. 9–11, 2005.

[58] T. Miyakawa and D. L. Dexter, “Phonon sidebands, multiphonon relaxation of excited states, and phonon-assisted energy transfer between ions in solids,” *Phys. Rev. B*, vol. 1, no. 7, pp. 2961–2969, 1970.

[59] W. Miniscalco, *Optical and Electronic Properties of Rare Earth Ions in Glasses*, no. December. 2001.

[60] P. Peterka, I. Kasik, A. Dhar, B. Dussardier, and W. Blanc, “Theoretical modeling of fiber laser at 810 nm based on thulium-doped silica fibers with enhanced 3H_4 level lifetime,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 3, p. 2773, Jan. 2011.

[61] T. Komukai, T. Yamamoto, T. Sugawa, and Y. Miyajima, “Upconversion Pumped Thulium-Doped Fluoride Fiber Amplifier and Laser Operating at 1.47 μm ,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 31, no. 11, pp. 1880–1889, 1995.

[62] S. D. Jackson and T. A. King, “Theoretical modeling of Tm-doped silica fiber lasers,” *J. Light. Technol.*, vol. 17, no. 5, pp. 948–956, 1999.

[63] F. I. El-Nahal, “Thulium Doped Fiber Amplifier (TDFA) for S-band WDM Systems,” *Open J. Appl. Sci.*, vol. 02, no. 04, pp. 5–9, 2012.

[64] S. Bennetts *et al.*, “External cavity diode lasers with 5kHz linewidth and 200nm tuning range at 155 μm and methods for linewidth measurement,” *Opt. Express*, vol. 22, no. 9, p. 10642, 2014.

[65] T. Tanaka *et al.*, “Littrow-type external-cavity blue laser for holographic data storage,” *Appl. Opt.*, vol. 46, no. 17, pp. 3583–3592, 2007.

[66] X. Baillard *et al.*, “Interference-filter-stabilized external-cavity diode lasers,” *Opt. Commun.*, vol. 266, no. 2, pp. 609–613, 2006.

[67] S. Perrin, F. X. Esnault, D. Holleville, S. Guérandel, N. Dimarcq, and V. Ligeret, “A new design of ECLD for compact atomic clocks,” *Proc. IEEE Int. Freq. Control Symp. Expo.*, pp. 86–89, 2007.

- [68] C. Basu, P. Weßels, J. Neumann, and D. Kracht, “High power single frequency solid state master oscillator power amplifier for gravitational wave detection,” *Opt. Lett.*, vol. 37, no. 14, pp. 2862–2864, 2012.
- [69] X. Bai, Q. Sheng, H. Zhang, S. Fu, W. Shi, and J. Yao, “High-Power All-Fiber Single-Frequency Erbium-Ytterbium Co-Doped Fiber Master Oscillator Power Amplifier,” *IEEE Photonics J.*, vol. 7, no. 6, pp. 1–6, 2015.
- [70] G. Guiraud, N. Traynor, and G. Santarelli, “High-power and low-intensity noise laser at 1064 nm,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 17, pp. 4040–4043, 2016.
- [71] M. C. T. Bahaa E. A. Saleh and 尾崎義治朝倉利光 訳, “基本 光工学2,” 森北出版株式会社, 2008.
- [72] J. Wu *et al.*, “Investigation of ion-ion interaction effects on Yb 3+ -doped fiber amplifiers,” *Opt. Express*, vol. 27, no. 20, p. 28179, 2019.
- [73] J. Koponen, M. Söderlund, H. J. Hoffman, D. A. V. Kliner, J. P. Koplow, and M. Hotoleanu, “Photodarkening rate in Yb-doped silica fibers,” *Appl. Opt.*, vol. 47, no. 9, pp. 1247–1256, 2008.
- [74] M. J. Söderlund, J. J. Montiel i Ponsoda, J. P. Koplow, and S. Honkanen, “Thermal bleaching of photodarkening-induced loss in ytterbium-doped fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 17, p. 2637, 2009.
- [75] R. Cao *et al.*, “532 nm pump induced photo-darkening inhibition and photo-bleaching in high power Yb-doped fiber amplifiers,” *Opt. Express*, vol. 27, no. 19, p. 26523, 2019.
- [76] S. Jetschke, S. Unger, A. Schwuchow, M. Leich, and M. Jäger, “Role of Ce in Yb/Al laser fibers: prevention of photodarkening and thermal effects,” *Opt. Express*, vol. 24, no. 12, p. 13009, 2016.
- [77] N. Zhao, W. Li, J. Li, G. Zhou, and J. Li, “Elimination of the Photodarkening Effect in an Yb-Doped Fiber Laser with Deuterium,” *J. Light. Technol.*, vol. 37, no. 13, pp. 3021–3026, 2019.
- [78] S. Jetschke and U. Röpke, “Power-law dependence of the photodarkening rate constant on the inversion in Yb doped fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 1, p. 109, 2009.
- [79] R. Peretti, C. Gonnet, and A.-M. Jurdyc, “Revisiting literature observations on photodarkening in Yb³⁺-doped fiber considering the possible presence of Tm impurities,” *J. Appl. Phys.*, vol. 112, no. 9, p. 93511, Nov. 2012.
- [80] J. Koponen, M. Söderlund, H. Hoffman, D. Kliner, and J. Koplow, “Photodarkening measurements in large-mode-area fibers - art. no. 64531E,”

Proc. SPIE - Int. Soc. Opt. Eng., vol. 6453, p. 64531E, Jan. 2007.

[81] H. Li *et al.*, “Pump Wavelength Dependence of Photodarkening in Yb-Doped Fibers,” *J. Light. Technol.*, vol. 35, no. 13, pp. 2535–2540, 2017.

[82] S. Taccheo *et al.*, “Concentration dependence and self-similarity of photodarkening losses induced in Yb-doped fibers by comparable excitation,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 20, p. 19340, 2011.

[83] S. Jetschke, S. Unger, M. Leich, and J. Kirchhof, “Photodarkening kinetics as a function of Yb concentration and the role of Al codoping,” *Appl. Opt.*, vol. 51, no. 32, p. 7758, 2012.

[84] S. Yoo *et al.*, “Photodarkening in Yb-doped aluminosilicate fibers induced by 488 nm irradiation,” *Opt. Lett.*, vol. 33, no. 11, p. 1217, 2008.

[85] M. Engholm and L. Norin, “Preventing photodarkening in ytterbium-doped high power fiber lasers; correlation to the UV-transparency of the core glass,” *Opt. Express*, vol. 16, no. 2, p. 1260, 2008.

[86] P. Jelger, M. Engholm, L. Norin, and F. Laurell, “Degradation-resistant lasing at 980 nm in a Yb/Ce/Al-doped silica fiber,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 27, no. 2, p. 338, 2010.

[87] S. Jetschke, S. Unger, A. Schwuchow, M. Leich, and J. Kirchhof, “Efficient Yb laser fibers with low photodarkening by optimization of the core composition,” *Opt. Express*, vol. 16, no. 20, p. 15540, 2008.

[88] J. J. Montiel i Ponsoda, M. Söderlund, J. Koplów, J. Koponen, A. Iho, and S. Honkanen, “Combined photodarkening and thermal bleaching measurement of an ytterbium-doped fiber,” *Fiber Lasers VI Technol. Syst. Appl.*, vol. 7195, no. February, p. 71952D, 2009.

[89] M. J. Söderlund, J. J. Montiel i Ponsoda, J. P. Koplów, and S. Honkanen, “Heat-induced darkening and spectral broadening in photodarkened ytterbium-doped fiber under thermal cycling,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 12, p. 9940, 2009.

[90] M. Leich, S. Jetschke, S. Unger, and J. Kirchhof, “Temperature influence on the photodarkening kinetics in Yb-doped silica fibers,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 28, no. 1, pp. 65–68, 2011.

[91] M. Engholm, L. Norin, and D. Åberg, “Strong UV absorption and visible luminescence in ytterbium-doped aluminosilicate glass under UV excitation,” *Opt. Lett.*, vol. 32, no. 22, p. 3352, 2007.

[92] C. G. Carlson, K. E. Keister, P. D. Dragic, A. Croteau, and J. G. Eden, “Photoexcitation of Yb-doped aluminosilicate fibers at 250 nm: evidence for

excitation transfer from oxygen deficiency centers to Yb^{3+} ,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 27, no. 10, p. 2087, 2010.

[93] P. D. Dragic, C. G. Carlson, and A. Croteau, “Characterization of defect luminescence in Yb doped silica fibers: part I NBOHC,” *Opt. Express*, vol. 16, no. 7, p. 4688, 2008.

[94] J. Kirchhof, S. Unger, A. Schwuchow, S. Grimm, and V. Reichel, “Materials for high-power fiber lasers,” *J. Non. Cryst. Solids*, vol. 352, no. 23–25, pp. 2399–2403, 2006.

[95] H. Gebavi *et al.*, “Temporal evolution and correlation between cooperative luminescence and photodarkening in ytterbium doped silica fibers,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 25, p. 25077, 2011.

[96] Y.-S. Liu *et al.*, “Linkage of oxygen deficiency defects and rare earth concentrations in silica glass optical fiber probed by ultraviolet absorption and laser excitation spectroscopy,” *Opt. Express*, vol. 20, no. 13, p. 14494, 2012.

[97] S. M. Kaczmarek, T. Tsuboi, M. Ito, G. Boulon, and G. Leniec, “Optical study of $\text{Yb}^{3+}/\text{Yb}^{2+}$ conversion in CaF₂ crystals,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 17, no. 25, pp. 3771–3786, 2005.

[98] R. Peretti *et al.*, “How do traces of thulium can explain photodarkening in Yb doped fibers?,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 19, p. 20455, 2010.

[99] Y. Xing *et al.*, “The influence of Thulium impurity on photobleaching in a photodarkened ytterbium-doped silica double-cladding fiber,” *Laser Phys. Lett.*, vol. 16, no. 6, 2019.

[100] T. Deschamps, H. Vezin, C. Gonnet, and N. Ollier, “Evidence of ALOHC responsible for the radiation-induced darkening in Yb doped fiber,” *Opt. Express*, vol. 21, no. 7, p. 8382, 2013.

[101] P. Laperle *et al.*, “Modeling the photodegradation of large mode area Yb-doped fiber power amplifiers,” *Proc. SPIE - Int. Soc. Opt. Eng.*, vol. 7195, Feb. 2009.

[102] I. Manek-Hönninger *et al.*, “Photodarkening and photobleaching of an ytterbium-doped silica double-clad LMA fiber,” *Opt. Express*, vol. 15, no. 4, pp. 1606–1611, 2007.

[103] A. D. Guzman Chávez, A. V. Kir’yanov, Y. O. Barmenkov, and N. N. Il’ichev, “Reversible photo-darkening and resonant photobleaching of Ytterbium-doped silica fiber at in-core 977-nm and 543-nm irradiation,” *Laser Phys. Lett.*, vol. 4, no. 10, pp. 734–739, 2007.

- [104] R. Piccoli *et al.*, “Evidence of Photodarkening Mitigation in Yb-Doped Fiber Lasers by Low Power 405 nm Radiation,” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 26, no. 1, pp. 50–53, 2014.
- [105] Y. Xing, H. Huang, N. Zhao, L. Liao, J. Li, and N. Dai, “Pump bleaching of Tm-doped fiber with 793-nm pump source,” *Opt. Lett.*, vol. 40, no. 5, pp. 681–684, 2015.
- [106] H. Gebavi *et al.*, “Mitigation of photodarkening phenomenon in fiber lasers by 633 nm light exposure,” *Opt. Lett.*, vol. 38, no. 2, pp. 196–198, 2013.
- [107] M. Leich, U. Röpke, S. Jetschke, S. Unger, V. Reichel, and J. Kirchhof, “Non-isothermal bleaching of photodarkened Yb-doped fibers,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 15, p. 12588, 2009.
- [108] M. M. Broer, D. M. Krol, and D. J. DiGiovanni, “Highly nonlinear near-resonant photodarkening in a thulium-doped aluminosilicate glass fiber,” *Opt. Lett.*, vol. 18, no. 10, p. 799, 1993.
- [109] P. Laperle, A. Chandonnet, and R. Vallée, “Photoinduced absorption in thulium-doped ZBLAN fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 20, no. 24, pp. 2484–2486, 1995.
- [110] G. Qin, S. Huang, Y. Feng, A. Shirakawa, M. Musha, and K. I. Ueda, “Photodegradation and photocuring in the operation of a blue upconversion fiber laser,” *J. Appl. Phys.*, vol. 97, no. 12, pp. 1–4, 2005.
- [111] P. R. Barber, R. Paschotta, A. C. Tropper, and D. C. Hanna, “Infrared-induced photodarkening in Tm-doped fluoride fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 20, no. 21, p. 2195, Nov. 1995.
- [112] I. J. Booth, J.-L. Archambault, and B. F. Ventrudo, “Photodegradation of near-infrared-pumped Tm³⁺-doped ZBLAN fiber upconversion lasers,” *Opt. Lett.*, vol. 21, no. 5, p. 348, Mar. 1996.
- [113] P. Laperle, A. Chandonnet, and R. Vallée, “Photobleaching of thulium-doped ZBLAN fibers with visible light,” *Opt. Lett.*, vol. 22, no. 3, p. 178, Feb. 1997.
- [114] Michel J. F. Digonnet, Ed., “Rare-Earth-Doped Fiber Lasers and Amplifiers, Revised and Expanded,” .
- [115] P. Laperle, R. Vallée, A. Chandonnet, and S. LaRoche, “Ultraviolet-induced color centers and annealing in thulium-doped fluorozirconate optical fibers,” *J. Alloys Compd.*, vol. 239, no. 1, pp. 116–120, 1998.
- [116] D. Faucher and R. Vallée, “Real-time photobleaching and stable operation at 204 mW of a Tm:ZBLAN blue fiber laser,” *IEEE Photonics*

Technol. Lett., vol. 19, no. 2, pp. 112–114, Jan. 2007.

[117] J.-F. Lupi *et al.*, “Steady photodarkening of thulium alumino-silicate fibers pumped at 107 μm : quantitative effect of lanthanum, cerium, and thulium,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 12, p. 2771, 2016.

[118] J. F. Lupi *et al.*, “Impact of cerium and lanthanum on the photodarkening and photo-bleaching mechanisms in thulium-doped fibre,” *Opt. Mater. (Amst.)*, vol. 72, pp. 106–114, 2017.

[119] Y. Xing *et al.*, “Elimination of radiation damage in Tm-doped silica fibers based on the radical bleaching of deuterium loading,” *OSA Contin.*, vol. 1, no. 3, pp. 987–995, 2018.

[120] “SolsTiS-datasheet.” [Online]. Available: <http://www.m2lasers.com/solstis-details.html?file=SolsTiS-datasheet.pdf>.

[121] S. Bilicki, “Strontium optical lattice clocks : clock comparisons for timescales and fundamental physics applications,” Université Pierre et Marie Curie - Paris, 2017.

[122] “Tunable Diode Lasers.” [Online]. Available: <http://quantum.phys.uni-sofia.bg/saltiel/AgateNATOSpringer06.pdf%0Ahttp://books.google.com/books?hl=en&lr=&id=W7b2JXKxq0sC&oi=fnd&pg=PA189&q=EFFICIENT+FREQUENCY-DOUBLING+OF+FEMTOSECOND+PULSES+IN+WAVEGUIDE+AND+BULK+NONLINEAR+CRYSTALS&a>.

[123] “Verdi G-Series.” [Online]. Available: chrome-extension://oemmnrcbldboiebfnladdacbdadm/https://www.coherent.com/assets/pdf/COHR_Verdi_G-Series_DS_0118_7.pdf#page=4.

[124] S. Bennetts *et al.*, “External cavity diode lasers with 5kHz linewidth and 200nm tuning range at 1.55 μm and methods for linewidth measurement,” *Opt. Express*, vol. 22, no. 9, pp. 10642–10654, 2014.

[125] S. V. Firstov *et al.*, “Dependence of the photobleaching on laser radiation wavelength in bismuth-doped germanosilicate fibers,” *J. Lumin.*, vol. 182, pp. 87–90, 2017.

[126] G. Androz, M. Bernier, D. Faucher, and R. Vallée, “2.3 W single transverse mode thulium-doped ZBLAN fiber laser at 1480 nm,” *Opt. Express*, vol. 16, no. 20, p. 16019, 2008.

[127] G. Androz, “(french) Etude d ’un laser à fibre de ZBLAN dopée au thulium émettant dans le proche infrarouge,” *Thesis*, 2010.

- [128] C. Floridia, M. T. Carvalho, S. R. Lüthi, and A. S. L. Gomes, “Modeling the distributed gain of single- (1050 or 1410 nm) and dual-wavelength- (800 + 1050 nm or 800 + 1410 nm) pumped thulium-doped fiber amplifiers,” *Opt. Lett.*, vol. 29, no. 17, p. 1983, 2004.
- [129] Z. Lali-Dastjerdi, F. Kroushavi, and M. H. Rahmani, “An efficient shooting method for fiber amplifiers and lasers,” *Opt. Laser Technol.*, vol. 40, no. 8, pp. 1041–1046, 2008.
- [130] F. Brunet, P. Laperle, R. Vallee, S. LaRochelle, and L. Pujol, “Modeling of Tm-doped ZBLAN blue upconversion fiber lasers operating at 455 nm,” in *Proc. SPIE*, 1999, vol. 3849, pp. 125–135.
- [131] M. A. Khamis and K. Ennsner, “Theoretical Model of a Thulium-Doped Fiber Amplifier Pumped at 1570 nm and 793 nm in the Presence of Cross relaxation,” *J. Light. Technol.*, vol. 34, no. 24, pp. 5675–5681, 2016.
- [132] 久保貴司, “ファイバラマンレーザーを用いた2波長励起システムによる810 nm帯Tm:ZBLANファイバMOPAの高効率化,” 電気通信大学, 2017.
- [133] E. M. Dianov, I. A. Bufetov, M. M. Bubnov, M. V Grekov, S. A. Vasiliev, and O. I. Medvedkov, “Three-cascaded 1407-nm Raman laser based on phosphorus-doped silica fiber,” *Opt. Lett.*, vol. 25, no. 6, pp. 402–404, 2000.
- [134] S. Huang, Y. Feng, A. Shirakawa, and K. Ueda, “Generation of 10.5 W, 1178 nm Laser Based on Phosphosilicate Raman Fiber Laser,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 42, no. Part 2, No. 12A, pp. L1439–L1441, 2003.
- [135] G. Androz, “Étude d’un laser à fibre de ZBLAN dopée au thulium émettant dans le proche infrarouge,” Université Laval, 2010.
- [136] T. Komukai, T. Yamamoto, T. Sugawa, and Y. Miyajima, “Upconversion pumped thulium-doped fluoride fiber amplifier and laser operating at 1.47 μm ,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 31, no. 11, pp. 1880–1889, 1995.
- [137] C. Floridia, M. T. Carvalho, M. L. Sundheimer, and A. S. L. Gomes, “Modeling the distributed gain of single (1050 nm or 1400 nm) and dual-wavelength (800 nm + 1050 nm or 800 nm + 1410 nm) pumped TDFAs,” in *Optical Fiber Communication Conference, 2004. OFC 2004*, 2004, vol. 1, p. 71.
- [138] M. F. Joubert, “Photon avalanche upconversion in rare earth laser materials,” *Opt. Mater. (Amst.)*, vol. 11, no. 2–3, pp. 181–203, 1999.
- [139] L. Guillemot *et al.*, “Thulium laser at $\sim 2.3 \mu\text{m}$ based on upconversion pumping,” *Opt. Lett.*, vol. 44, no. 16, p. 4071, 2019.

- [140] N. Poli *et al.*, “A transportable strontium optical lattice clock,” *Appl. Phys. B Lasers Opt.*, vol. 117, no. 4, pp. 1107–1116, 2014.
- [141] S. Jetschke, S. Unger, U. Röpke, and J. Kirchhof, “Photodarkening in Yb doped fibers: experimental evidence of equilibrium states depending on the pump power,” *Opt. Express*, vol. 15, no. 22, p. 14838, 2007.
- [142] U. Röpke, S. Jetschke, and M. Leich, “Linkage of photodarkening parameters to microscopic quantities in Yb-doped fiber material,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 35, no. 12, p. 3126, 2018.
- [143] J.-F. Lupi *et al.*, “Impact of cerium and lanthanum on the photodarkening and photo-bleaching mechanisms in thulium-doped fibre,” *Opt. Mater. (Amst)*, vol. 72, pp. 106–114, 2017.
- [144] P. Laperle, R. Vallée, and A. Chandonnet, “Stability aspects in the operation of a 2500-ppm thulium-doped ZBLAN fiber laser at 481 nm,” *Opt. Commun.*, vol. 175, no. 1, pp. 221–226, 2000.
- [145] S. Kolkowitz, I. Pikovski, N. Langellier, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, and J. Ye, “Gravitational wave detection with optical lattice atomic clocks,” *Phys. Rev. D*, vol. 94, no. 12, pp. 1–15, 2016.
- [146] C. R. Day, P. W. France, S. F. Carter, M. W. Moore, and J. R. Williams, “Fluoride fibres for optical transmission,” *Opt. Quantum Electron.*, vol. 22, no. 3, pp. 259–277, 1990.

学術発表一覧

関連論文

- [1] E. Kajikawa, T. Ishii, T. Kubo, Y. Takeuchi, K. Ogawa, and M. Musha, “Dual-wavelength-pumped Tm³⁺-doped ZBLAN fiber MOPA at 813 nm,” *Opt. Lett.*, vol. 44, no. 11, p. 2875, Jun. 2019. (査読あり)

国際会議発表

- [1] E. Kajikawa, T. Kubo, T. Ishii, Y.-I. Takeuchi, M. Musha, and K. Ogawa, “High efficient dual-wavelength-pumped (1050 + 1220 nm) Tm³⁺-doped ZBLAN fiber MOPA at 813 nm,” in *8th EPS-QEOD Europhoton Conference*, FrM1.5.(9,2018) (査読あり、口頭発表)
- [2] E. Kajikawa, T. Kubo, T. Ishii, K. Ogawa, and M. Musha, “High slope efficiency and high power 813-nm Tm³⁺:ZBLAN fiber MOPA for the lattice laser of Sr optical lattice clock,” in *CLEO/EUROPE-EQEC 2019*, CJ-13.5. (6,2019) (査読あり、口頭発表)
- [3] E. Kajikawa, T. Ishii, K. Ogawa, and M. Musha, “A stable watt-class 813-nm Tm³⁺-doped ZBLAN fiber MOPA with photobleaching,” in *OSA Laser Congress Advanced Solid State Laser (ASSL)*, JM5A.11. (9,2019) (査読あり、ポスター発表)

国内会議発表

- [1] 久保貴司, 梶川詠司, 竹内裕一, 河野健太, 武者満, “誘導ラマン散乱を用いた2波長励起システムによる810nm帯Tm:ZBLANファイバMOPAの高効率化,” レーザー学会学術講演会第38回年次大会, B625aVII10, 2018年1月
- [2] 梶川詠司, 久保貴司, 竹内裕一, 武者満, 小川和彦, “813 nm Tm³⁺:ZBLANファイバーMOPAの2波長励起,” 第65回応用物理学会春季学術講演会, 17p-B403-2, 2018年3月

- [3] 石井知広, 梶川詠司, 久保貴司, 武者満, 小川和彦, “813 nm Tm^{3+} :ZBLANファイバーMOPAの高効率・高出力化,” 第79回応用物理学会秋季学術講演会, 19p-431B-6, 2018年9月
- [4] 石井知広, 梶川詠司, 久保貴司, 武者満, 小川和彦, “ Tm^{3+} :ZBLANファイバを用いた813nm光源の高出力安定動作,” レーザー学会学術講演会第39回年次大会, B412pVIII09, 2019年1月
- [5] 梶川詠司, 石井知広, 久保貴司, 武者満, 小川和彦, “高出力安定動作可能な813 nm Tm^{3+} :ZBLANファイバーMOPA,” 第66回応用物理学会春季学術講演会, 10a-W834-8, 2019年3月
- [6] 梶川詠司, 石井知広, 小川和彦, 武者満, “高出力810 nm帯 Tm^{3+} :ZBLANカスケードファイバーMOPAの安定動作,” 第80回応用物理学会秋季学術講演会, 21a-E203-2, 2019年9月
- [7] 石井知広, 梶川詠司, 武者満, 小川和彦, “側面研磨によるZBLANファイバカプラの開発,” 第80回応用物理学会秋季学術講演会, 21a-E204-8, 2019年9月
- [8] 梶川詠司, 石井知宏, 武者満, 小川和彦, “高出力810 nm帯ファイバ増幅器における信号光フォトブリーチング効果,” レーザー学会学術講演会第40回年次大会, B09-22p-III-03, 2020年1月
- [9] 石井知宏, 梶川詠司, 武者満, 小川和彦, “側面研磨ZBLANファイバを用いたファイバ光学素子の開発,” レーザー学会学術講演会第40回年次大会, F01-20p-XI-05, 2020年1月

謝辞

本論文は博士後期課程における研究をまとめたものです。本研究を進める上でお力添え頂いたすべての人に感謝致します。

中でも指導教員の武者満准教授には感謝してもしきれません。学部4年の時から研究室に配属されましたが、不真面目だった私を1から熱心に指導して頂きました。博士後期課程までは目標に向かって進む事だけに捉われていましたが、研究開発の途中に生まれる研究要素を深掘りすることの大切さや、研究に対する考え方、姿勢など多くの事を学びました。そして海外発表含め多くの学会で発表する機会を頂き、食事をしながら議論しました。大変貴重な経験をさせて頂き、それ以上に手厚く指導して頂きました。深く感謝致します。

白川晃准教授には研究についてアドバイスや助言を頂きました。また融着接続器をころよく貸して頂き実験をスムーズに進めることができました。感謝申し上げます。

米田仁紀教授には国際ワークショップや、ETL インストラクターをする機会を頂きました。国際ワークショップでは異分野の若手研究者と交流し MIT などアメリカの大学を見学する事もできました。そういった貴重な経験をする事ができたのは米田先生のおかげです。また、グリーンレーザーを貸して頂きました。深く感謝致します。

博士後期課程の審査員を受けて頂いた桂川眞幸教授、渡辺昌良教授にもこの場を借りて感謝申し上げます。

共同研究をいて頂いたファイバーラボ株式会社の皆様にも感謝致します。特に小川和彦氏には実験の事やモジュール作りについてたくさんの事を教えて頂きました。深く感謝致します。

武者研究室の学生にも感謝致します。特に一緒のテーマだった久保貴司氏と石井知広氏とは一緒に夜中まで研究し、たくさんの議論を交わしました。遠藤駿氏含め優秀な後輩がいてくれたおかげで充実した研究生活を送る事ができ、同時に心が折れる事なく研究を進めることができました。感謝致します。

北島将太朗氏、末正有氏、竹内裕一氏、そして道根百合奈氏は同じ博士課程の学生として気軽に研究やプライベートの相談などができました。私が研究生活を送る上で大変貴重な存在でした。感謝致します。

レーザー新世代研究センターの皆様に深く感謝申し上げます。

最後に、陰ながら支えてくださった両親に深く感謝いたします。