

中赤外パルスレーザーによる透明樹脂の微細加工

京都大学 化学研究所

教授 時田 茂樹

(2020 年度 一般研究開発助成 AF-2020228-B3)

キーワード：中赤外レーザー，レーザー樹脂加工，ファイバレーザー，Fe:ZnSe レーザ

1. 研究の背景と目的

固体レーザー技術の進展により、小型・高効率かつ信頼性の高い高出力レーザー光源が産業・医療・科学などの分野で実用に供されるようになった。レーザー光源への要求は益々高度化・多様化しており、高出力化、短パルス化、高効率化、新波長帯開発など、様々な研究開発が行われている。本研究では挑戦的な課題の一つである中赤外域における長波長帯レーザー開発に注目した。長波長レーザーの実用化が難しい背景として、利用可能なレーザー媒質および励起光源が限られていること、石英等の一般的な光学ガラスの赤外吸収端を超える波長であることなどが挙げられる。しかし、産業界からの中赤外レーザーのニーズは大きく、有用性が広く認識されている。例えば、可視～近赤外光に対する級数係数が小さいガラスや樹脂などの透明材料の加工に、波長 2.5～5 μm の中赤外レーザーが有用であると考えられている。

本研究では、中赤外レーザー光を直接発生でき、将来的に更なる高出力化が可能な新規固体レーザー技術、ならびに、中赤外レーザーを用いた樹脂加工技術の確立を目指し、Fe:ZnSe レーザおよび中赤外レーザーによるプラスチック光ファイバの融着接続に関する基礎実験を行った。

2. Q スイッチ Fe:ZnSe レーザ

2.1 概要

遷移金属をドーブした II-IV 族カルコゲナイド(例えば、Cr:ZnS, Cr:ZnSe, Fe:ZnS, Fe:ZnSe など) を基にした中赤外線レーザーは、近年大きな注目を集めている¹⁾。これは、産業、医療、科学研究分野において多くの潜在的な応用があるためである。遷移金属をドーブした II-IV 族カルコゲナイドは、遷移金属イオンの四面体配位における小さなエネルギー分裂と強い電子-フォノン結合により、広い吸収帯域と発光帯域、そして大きな断面積をもつため、中赤外域の波長可変レーザーや超高速レーザーに適している。特に、Fe:ZnSe は 3.8～5.2 μm の広帯域な発光を示し、Fe:ZnS や Fe:CdSe に比べて蛍光寿命が長いという利点を有するため有望視されている。本稿では、我々が開発した Er:ZBLAN ファイバレーザー励起 Q スイッチ Fe:ZnSe レーザについて報告する。

2.2 実験装置

音響光学 Q スイッチ Fe:ZnSe レーザの実験セットアップを図 1 に示す。Fe:ZnSe 単結晶 (Fe 添加濃度: $3.5 \times 10^{18}/\text{cm}^3$) は、レーザー準位の寿命の短縮を防ぐため 77 K に低温冷却された。Fe:ZnSe 結晶と CaF₂ ウィンドウは、フ

ネル損失を減らすためにブルースター角で配置された。励起光源として、最大出力 5 W の CW Er:ZBLAN ファイバレーザーが使用された。このファイバレーザーの発光波長 2800 nm は、回折格子によって安定化されており、大気中の H₂O 分子による吸収が比較的小さい。また、ビーム品質 (M² 値) は 1.1 であった。ファイバレーザーから出力される平行ビームは、凹型キャビティミラーを介してビーム直径 210 μm に集光された。52% の入射励起パワーが長さ 8 mm の Fe:ZnSe 結晶に吸収された。音響光学変調器 (AOM) はゲルマニウム製で、P 偏光に対して大きな損失変調を示し、長さ約 194 mm の凹型-凹型共振器に挿入された。このシステムでは、プリユースター角配置により直線偏光のレーザー出力が得られる。共振器ミラーは AOM の 0 次回折モードに合わせて配置された。AOM の回折効率 は 50% 以上、立ち上がりおよび立ち下がり時間は約 90 ns、光透過損失は 2% であった。残留励起光はロングパスフィルター (カットオフ波長 3000 nm) によって除去された。出力パワーとレーザー発振スペクトルは、それぞれパワーメーター (PM10、コヒーレント) および光スペクトラムアナライザー (AQ6377、横河電機) を使用して測定された。パルス動作を確認するために、時間波形は InAsSb 光検出器 (P13894-211MA、浜松ホトニクス) を使用して観察された。

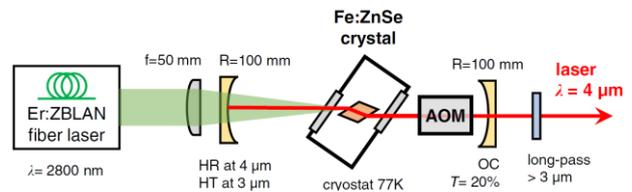


図 1 Fe:ZnSe レーザの概略図

2.3 実験結果

励起パワーに対する Fe:ZnSe レーザの平均出力を図 2 に示す。AOM なしの CW 動作下では、吸収励起パワーの発振閾値は約 300 mW であった。CW 出力はポンプパワーの増加に伴い線形に増加し、スロープ効率は 46% であった。また、入射励起パワーに対するスロープ効率は 24% であった。吸収励起パワー 2.6 W において、最大 CW 出力 1.15 W が得られた。Q スイッチ動作下における平均出力の励起パワー依存性を図 2 に示す。図 2 に示された範囲よりも低い励起パワーでは、Q スイッチの繰り返し率よりも低い頻度でパルス発振が観察された。また、高い励起パワーでは Q スイッチの繰り返し周期内に複数のパルスが観察さ

れた。繰り返し率 10 kHz および 30 kHz におけるスロープ効率は 14%~16% であり、30 kHz での最大平均出力は 0.5 W であった。

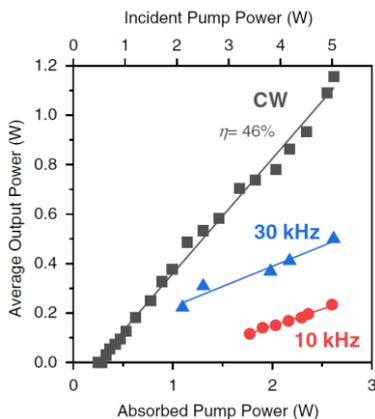


図 2 CW (四角) および Q スイッチ発振 (繰り返し率 10 kHz および 30 kHz) における平均出力

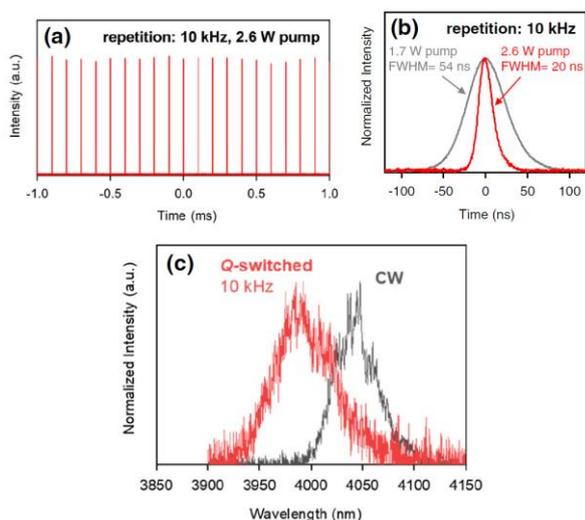


図 3 (a) Q スイッチ Fe:ZnSe レーザの典型的なパルス列の時間波形、(b) 単一パルスの時間波形、(c) CW および Q スイッチ動作時の典型的なレーザースペクトル

図 3 (a) および (b) に繰り返し率 10 kHz での Q スイッチ Fe:ZnSe レーザの典型的な時間波形を示す。前述のように (図 2)、5~40 kHz の周波数範囲で安定したパルス列が得られた。図 3 (b) には、1.7 W および 2.6 W での励起における 10 kHz の出力パルスの時間波形を示している。これは、図 2 における最も低い励起パワーおよび最も高い励起パワーにそれぞれ対応する。励起パワーを 1.7 W から 2.6 W に増加させると、パルス幅は 54 ns から 20 ns に短縮された。高い励起パワーは媒質内での利得を増大させ、これにより少ない往復回数 (1 回の往復=1.4 ns) でレーザパルスが生成される。図 3 (c) には、2.6 W 励起における CW および 10 kHz Q スイッチ動作の典型的なレーザ発振スペクトルを示す。CW および Q スイッチ動作の中心波長および全幅半最大 (FWHM) は、それぞれ 4045 nm / 45 nm および 3990 nm / 65 nm であった。単結晶媒質を使用した場

合でも、Fe:ZnSe レーザは比較的広い発振スペクトル幅を示すことが知られている²⁾。

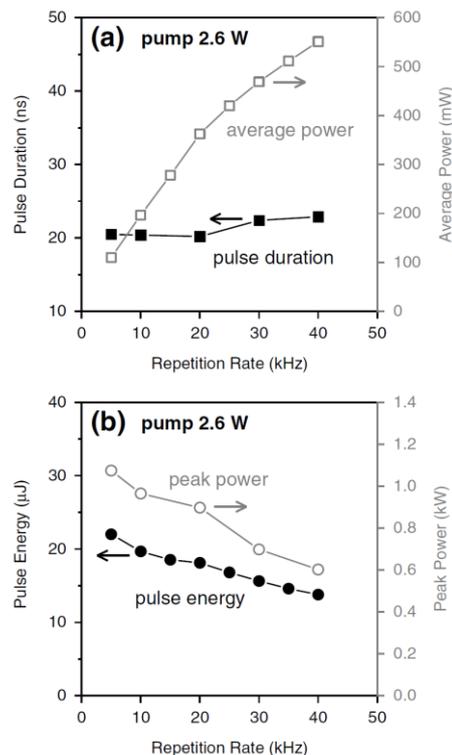


図 4 (a) 2.6 W 励起における Q スイッチ Fe:ZnSe レーザのパルス幅と平均出力の繰り返し率依存性、(b) パルスエネルギーとピークパワーの繰り返し率依存性

2.6 W の吸収励起パワー、すなわち本実験での最大励起パワーにおいて、5~40 kHz の範囲でレーザ性能の繰り返し率依存性を評価した。図 4 (a) にパルス幅と平均出力の繰り返し率依存性を示す。FWHM パルス幅は、繰り返し率に応じて 20 ns から 23 ns の間でわずかに変化した。これは、Q スイッチ Fe:ZnSe レーザで得られた最短のパルス幅である。20 kHz 以下の繰り返し率ではパルス幅は変化せず、20 kHz を超えるとわずかに増加した。このようなパルス幅の飽和現象は、パルス周期が Fe:ZnSe の上準位寿命よりも長いために生じたと考えられる。77 K での寿命は 57 μs であり、これは 17.5 kHz の繰り返し周期に相当する。この値よりも長い変調周期でアクティブ Q スイッチングが行われる場合、利得媒質に蓄えられたエネルギーは自発放出によって制限される。本システムでは、実際の寿命は 40 kHz の逆数である 25 μs 未満と推定される。上準位寿命が報告値よりも短い理由は、高出力励起によって結晶温度が局所的に上昇したためと推測される。図 2 に示される 30 kHz 動作の不規則な閾値特性も、この観点から説明できる。励起パワーが増加するにつれて上準位寿命が短くなり、利得が変化した可能性がある。平均出力は繰り返し率が高いほど増加し、40 kHz で最大平均出力 0.55 W が得られた。パルスエネルギーとピークパワーの繰り返し率依存性を図 4 (b) に示す。パルスエネルギーは繰り返し率

の増加に伴い 22 μJ から 14 μJ に減少した。最大ピークパワー 1.1 kW は 5 kHz で達成され、40 kHz の繰り返し率でも 0.6 kW の高いピークパワーが維持された。

このシステムの比較的高いスロープ効率、励起ビームモードと共振器モードの良好なモードマッチングにより実現された。Fe:ZnSe 結晶上の励起スポット直径は約 210 μm と推定された。TEM₀₀ モードを仮定すると、結晶中のレーザーモード直径は 210~220 μm と計算された。励起吸収率が現在のシステムで 52% に過ぎないため、さらにパワースケーリングのためには、Fe:ZnSe 結晶の長さを最適化する必要がある。これまでに報告された強制 Q スイッチまたは利得スイッチ技術を用いた Fe:ZnSe パルスレーザーは、励起光源の繰り返し率の制限のため、1 kHz 以下の繰り返し率が一般的であった。半導体飽和吸収ミラー (SESAM) を用いた受動 Q スイッチ Fe:ZnSe レーザでは、繰り返し率が 100 kHz を超えることが報告されているが、パルスエネルギーはサブ μJ レベルであり、ピークパワーは 10 W 未満であった。例えば、フッ化物やカルコゲナイドガラスファイバーを用いた中赤外スーパーコンティニューム生成のためには、少なくとも数 kW のピークパワーが必要である。本システムでは、集光ビーム直径 50 μm を仮定すると、集光強度およびフルエンスはそれぞれ 56 MW/cm² および 1.1 J/cm² に達する。1 J/cm² のフルエンスがあればガラスやポリマーのレーザー加工用光源として実用化が期待できる。近年、半導体レーザー励起 Er ドープ固体レーザーの高出力化が進んでいる。これらの高出力な 3 μm 帯レーザーは、Fe:ZnSe レーザの励起光源として適しており、今後の更なる高出力化が期待される。

3. 中赤外ファイバレーザによるプラスチック光ファイバの融着接続

3.1 概要

中赤外レーザー光源は、分光法、外科手術、センサなど多くの用途において重要な技術として認識されている。過去 10 年間で、中赤外ファイバレーザの高出力化に関して顕著な進展があった。我々のグループは、2.8 μm の安定した高出力産業用エルビウムドープファイバレーザを開発し、この技術の応用を探求してきた^{3,4)}。このレーザーの用途の一つとして、将来の通信システムに組み込まれる可能性のあるプラスチック光ファイバー (POF) の融着接続が挙げられる。POF は、コスト効率、安全性、柔軟性、およびセンシングデバイスとしての利用など、さまざまな利点を有する。これまでに POF の融着接続のために試行された手法として、電気アーク融着やポリエーテルエーテルケトン (PEEK) チューブを使用した熱融着などがある⁵⁾。電気アーク融着は、高温を必要とするシリカガラスファイバーに広く利用されているが、POF への利用では熱的な劣化を引き起こす可能性がある。CO₂ レーザは POF の融着接続の代替手段として使用できるが、ポリメチルメタクリレート (PMMA) などの低融点ポリマーは CO₂ レーザ光を

過剰に吸収するため、適さない場合がある。ファイバの半径方向に均一な加熱を達成するためには、レーザービームを分割して多方向から照射を行う必要がある。これは、波長 10.6 μm の CO₂ レーザが供給する発熱密度が高すぎるためである (図 5)。より均一な加熱を実現するためには、比較的低い吸収率をもつ波長のレーザーが適している。市販の CO₂ レーザとは異なり、我々が開発した波長 2.8 μm の Er ファイバレーザは、約 1.0 の M² 値で高品質のビームを提供し、最大 30 W の安定した出力を実現している⁶⁾。

本研究は、波長 2.8 μm の連続波 Er ファイバレーザを用いて POF の融着接続を実証したものである。この装置は接着剤や他の処理を必要とせずに POF を加工することができる。さらに、これらのファイバの樹脂は 2.8 μm で適度なエネルギー吸収を示すため、POF に照射されるレーザービームを分割する必要もない。本手法の有効性は、融着後の POF の光透過率、引張強度および曲げ強度を評価することで検討された。

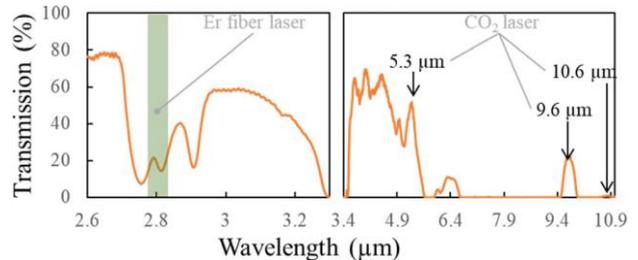


図 5 厚さ 0.2 mm の PMMA フィルムの赤外線透過スペクトルと、Er ファイバレーザおよび CO₂ レーザの発光線

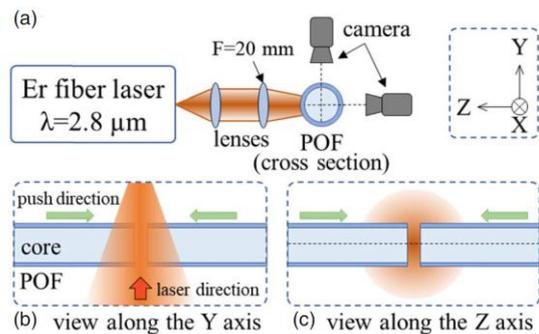


図 6 中赤外ファイバレーザを使用した POF 融着の実験装置の概略図、(a)装置全体、(b)Y 軸から見た図、(c)Z 軸から見た図

3.2 実験装置

本実験では、市販の POF (PMMA 製、直径 0.5 mm の ESKA-GCK-20E、三菱ケミカル製) を使用した。図 6 は POF の融着に使用した実験装置の概略図である。ここで、図 6 (b) と図 6 (c) は、それぞれ Y 軸および Z 軸方向から見た図である。この装置では、焦点距離 20 mm の CaF₂ レンズが 2.8 μm のレーザービームを焦点に合わせ、焦点でスポットサイズを 15 μm にした。予備実験の結果に基づき、レーザーの焦点は POF の反対側の表面から 1.0 mm の距離に位置させた (図 6 (b))。この構成により、ファイバの均一な

加熱が可能となった。なお、焦点が POF よりもレーザー光源に近い場合、ファイバ端がレーザー光源に向かって曲がり、融着が失敗することが分かっている。

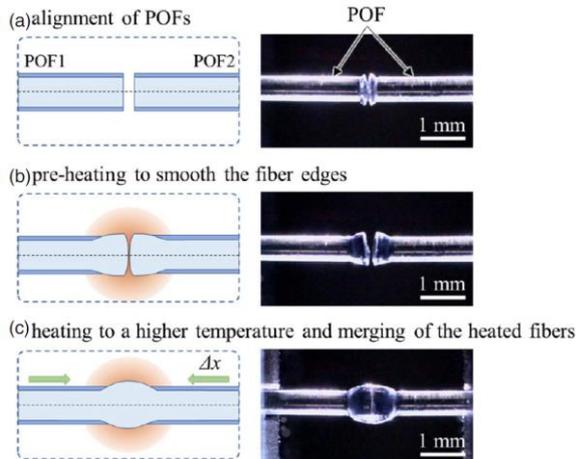


図7 融着接続の手順、(a)POFの位置合わせ、(b)ファイバ端を平滑にするための予熱、(c)接合のための加熱

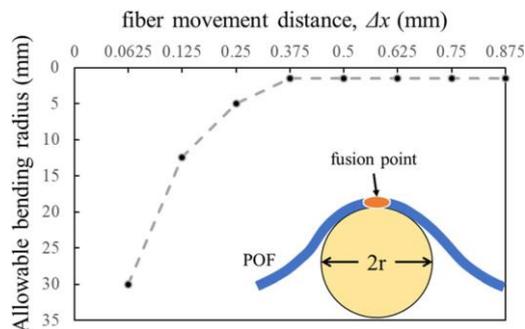


図8 許容曲げ半径のファイバ移動距離 Δx 依存性

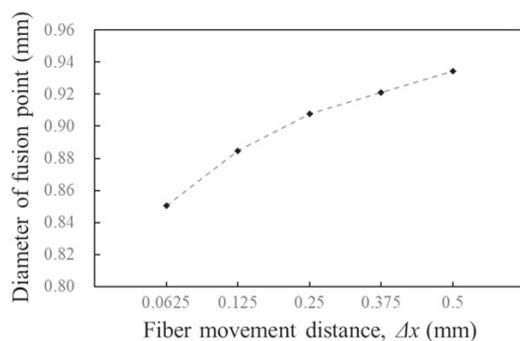


図9 融着点直径のファイバ移動距離 Δx 依存性

3・3 実験結果

融着の各段階を示す図と顕微鏡で撮影した写真を図7に示す。このプロセスでは、2本のファイバー (POF1とPOF2) が個別の3軸ステージに取り付けられた(図7(a))。POFの端面を互いに向き合わせ、2方向からの顕微鏡画像を観察しながら調心を行った。図7(b)に示すように、POFの先端と先端をほぼ接触するまで近づけ、80 mWのレーザー光を照射して先端を予熱した。この予熱の後、レーザー出力を120 mWに増加し、ファイバ先端を設定距離 (Δx) だけ移動させることで同時に接合した。この時、2本のフ

ァイバの光軸 (図7(c)) を接合後に再度調心し、光透過率が最大の時にレーザー照射を停止することで接合損失を低減することができる。

図8は、接合された POF サンプルの許容曲げ半径値を Δx の関数としてプロットしたものである。ここで許容曲げ半径とは、ファイバが折れない最大の曲げ半径を意味する。POFは、半径が1.5 mm~30 mmの円筒面に沿って曲げられた(図8)。これらの値は、曲げ半径が小さいほど強度が高いことを示しており、接合された POF の曲げ強度の指標となる。図8からわかるように、 Δx が増加するにつれて許容曲げ半径は減少し、 Δx が0.375 mm以上の場合、最小半径は1.5 mm未満であることが確認された。これらの結果は、曲げ強度が Δx と相関していることを示しており、これはおそらく、図9に示すように、融着点でのファイバ直径 D が Δx の増加とともに増加するためである。

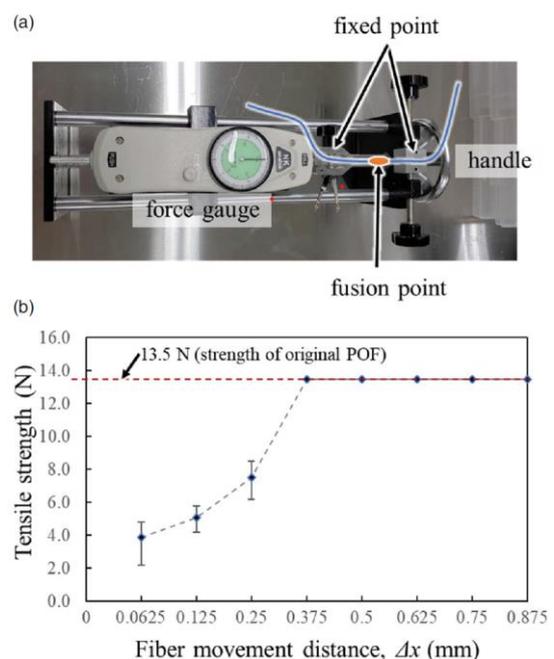


図10 引張試験装置の写真、引張強度のファイバ移動距離 Δx 依存性 (赤い破線は元の POF の引張強度を示す)

さまざまな試料における融着点の引張強度は、各 POF サンプルを2つのクランプで固定し、フォースゲージを使用して評価した。これらの試験では、各 Δx 値に対して3つの接合された POF サンプルが作成され、テストされた。各接合ファイバを試験装置に取り付け、図10(a)に示すようにホイールを手動で回転させることによって融着点に張力をかけた。図10(b)に示すように、引張強度は Δx の増加に伴って増加し、13.5 Nで飽和した。これは、ファイバ自体が伸びることにより、張力が13.5 Nで値が頭打ちになるためである。この結果に基づき、元の POF の引張強度を13.5 Nと仮定すると、融着点および元の POF の引張強度はそれぞれ 4.92 Nm^{-2} および 17.2 Nm^{-2} と算出された。この結果は、融着点での引張強度が十分に高いこと

を示している。ただし、融着点で得られた高い引張強度は、元の POF 直径と比較して部分的に直径が増加したことが要因の一つになっていることに注意する必要がある。

5つの接合 POF サンプルについて、接合点における光透過特性が評価された。これらの試験では、レーザダイオード (LD, Civil Laser, LSR660-NL) およびフォトダイオード検出器 (PD, Ophir, PD300-1W) が、接合された2本のファイバの接合点の両側に配置された (図1 1 (a)参照)。図に示すように、クラディングモードによる PD への光伝搬を軽減するため、POF2の長さは3 m 以上とした。純粋な接合損失を評価するために、伝送損失および POF への結合損失を、接合前後の透過電力を比較することで排除した。 Δx が増加するにつれて許容曲げ半径および引張強度の値が増加するのは対照的に、光透過率は徐々にかつ断続的に減少した (図1 1 (b))。図1 1 (c)は、LD 照射中の接合点の顕微鏡で取得した写真である。透過率の低下は、接合点での直径が増加するにつれて、モードミスマッチの影響が増加したことに起因する。すなわち、 Δx を減少させることで、接合点での透過損失を減少させることができた。最大透過率は $\Delta x = 0.063$ mm で0.76であった。この Δx の値は、接合中に POF を操作するために使用されたステージの手動操作で得られる最小値であった。 $\Delta x = 0.875$ mm のデータを除き、最大および最小透過率の差は Δx を増加させることで減少した。これは、プロセスの再現性が向上したことを示している。

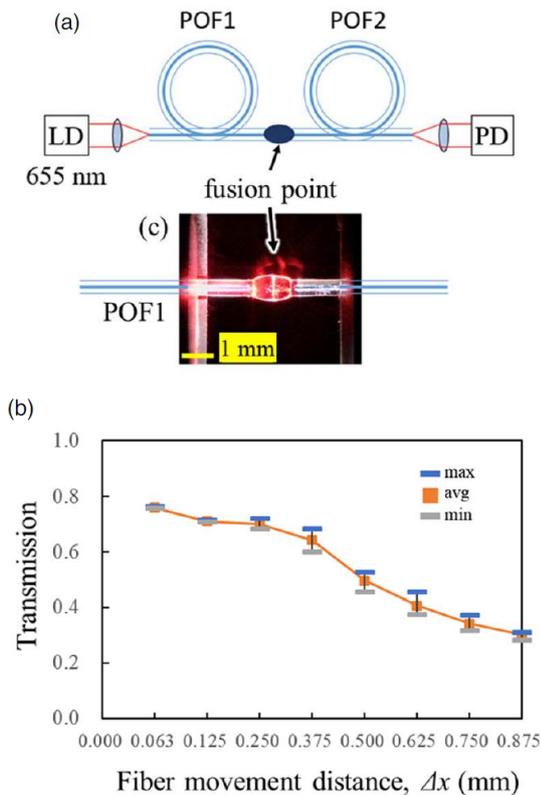


図1 1 (a)透過率測定装置、(b)光透過率のファイバ移動距離 Δx 依存性、(c)融着点の写真 (LD:レーザダイオード、PD:フォトダイオード)

結論として、本研究は 2.8 μm 連続波ファイバレーザを使用して、接着剤や他の処理を必要とせずに POF の融着接続を実証したものである。融着接続後の POF の光透過率、引張強度、および曲げ強度の値を評価した。現在の接合試料の透過特性は高品質の伝送を要求するアプリケーションには不十分であるが、引張強度と曲げ強度は実用に適している。この提案された技術は、将来の POF ネットワークの発展に寄与する可能性がある。さらに、自動ステージを使用して Δx を減少させることで、これらの接合 POF の光透過率が向上することが期待される。実用的なアプリケーションの要件を満たすファイバ特性は、今後の研究において Δx とレーザ照射条件を含む加熱プロセスの両方を最適化することによって得られる可能性がある。

4. まとめ

本研究では、中赤外レーザ光源の開発と、それを用いた透明樹脂の加工に関する基礎研究を行い、特に Fe:ZnSe レーザとプラスチック光ファイバ (POF) の融着接続に焦点を当てた。開発した Er ファイバレーザ励起 Q スイッチ Fe:ZnSe レーザは、波長約 4.0 μm で発振し、最大出力 1.15 W の連続波動作および最大ピークパワー 1.1 kW の Q スイッチ動作を達成した。この高出力かつ高品質な中赤外レーザは、産業、医療、科学研究など多くの分野での応用が期待される。さらに、波長 2.8 μm の連続波 Er ファイバレーザを使用して、POF の融着接続を実証した。この技術は接着剤や他の処理を必要とせず、レーザビームを分割する必要もないため、効率的かつ簡便に POF を加工することが可能である。この技術は将来の POF ネットワークの発展に寄与する可能性がある。今後、プロセスの最適化を行い、実用的なアプリケーションの要件を満たすファイバ特性を得られることが期待される。

謝辞

本研究は、公益財団法人天田財団の一般研究開発助成のご支援を受けて実施しました。ここに謝意を表します。また共同研究者である核融合科学研究所の上原日和氏、秋田県立大学の合谷賢治氏らに謝意を表します。

参考文献

- 1) S. B. Mirov *et al.*, J. Sel. Top. Quantum Electron. **24**, 1 (2018).
- 2) A. V. Pushkin *et al.*, Opt. Lett. **43**, 5941 (2018).
- 3) C. A. Schäfer *et al.*, Opt. Lett. **43**, 2340 (2018).
- 4) K. Goya *et al.*, Appl. Phys. Express **12**, 102007 (2019).
- 5) K. Hara *et al.*, Methods Phys. Res. Sect. A **348**, 139 (1994).
- 6) K. Goya *et al.*, Appl. Phys. Express **12**, 102007 (2019).