

## Harmonic generation of the FEL using NLO\*

Ken Hayakawa<sup>1,A)</sup>, Toshinari Tanaka<sup>A)</sup>, Yasushi Hayakawa<sup>A)</sup>, Keisuke Nakao<sup>A)</sup>, Kyouko Nogami<sup>A)</sup>,  
Takeshi Sakai<sup>B)</sup>, Isamu Sato<sup>B)</sup>, Akira Mori<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup> Institute of Quantum Science, Nihon University 24-1, Narashinodai, 7-chome, Funabashi-shi, Chiba, 274-8501

<sup>B)</sup> Advanced Research Institute for the Science and Humanities, Nihon University  
12-5, Goban-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 102-8251

<sup>C)</sup> College of Pharmacy, Nihon University 7-1, Narashinodai, 7-chome, Funabashi-shi, Chiba, 274-8555  
8-14, Kanda-Surugadai 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8308

### Abstract

Preliminary experiments for generating harmonics of the free electron laser by using NLO (nonlinear optical crystals) have been performed at LEBRA. We used KTP (KTiOPO<sub>4</sub>) crystals for SHG (second harmonic generation) and THG (third harmonic generation). Measured conversion efficiencies of the SHG are from 3% to 9% between the fundamental wavelengths of 1400nm to 1800nm. The THG is observed, however the conversion efficiency is far smaller than 1%. Because of the group velocities mismatch of the two components of fundamental light, the conversion phenomenon occurs within only about 1 mm in depth from entrance of the crystal.

## 非線形光学結晶を用いた FEL 高調波の発生

### 1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設では、波長1.3~6 $\mu\text{m}$ の自由電子レーザーを利用実験に供給しているが、より短波長のレーザーの需要も多く、これにはFELの非線形高調波によって対応している。しかし、非線形高調波は、コヒーレントな光ではあるが、基本波に比べ、その強度が数桁弱く、利用が限られている。短波長でFELを共振させればよいのだが、短波長で共振させるにはいくつか問題があることがわかっており、むしろ、非線形光学結晶(NLO: Non-Linear Optical crystal)を使って高調波を発生させる方が現実的であると考えられる。結晶の選択によっては非常に広帯域で高調波を発生させることが期待できる。波長可変範囲0.4~1.3 $\mu\text{m}$ を目標に、検討を行い、予備実験を始めた。非線形光学結晶としては、Nd:Yagレーザーなどの高調波発生用に使われ、入手が容易で、特性も良くわかっているKTP(KTiOPO<sub>4</sub>)を使用した。

### 2. 非線形光学結晶による高調波の発生

短波長で強力なコヒーレント光を得るために、Nd:Yagレーザー等の強力な赤外レーザーを非線形光学結晶によって波長変換する技術が研究され、実用化もされている。非線形光学結晶に二種類のコヒーレントな光を重畳させて入射すると、和周波及び差周波が発生する。結晶内の異なる場所で発生した光の位相が揃っていれば、進行方向に沿って、積み重ねられ、大きな出力として取り出される。この条

件を位相整合と呼んでいる。ここで取り上げるのは第2及び、第3高調波発生である (SHG and THG)。これらは、いずれも和周波発生の特殊な場合である。後述のように、位相整合には結晶の異方性を利用しているが、このような結晶の場合、主屈折率の小さい順に、x、y、zの座標を割振る。

#### 2.1 位相整合条件と変換効率

位相整合条件は和周波発生の場合

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 \\ = \frac{2\pi n_3}{\lambda_3} - \frac{2\pi n_2}{\lambda_2} - \frac{2\pi n_1}{\lambda_1} = 0$$

である。ここで、 $k_1$ 、 $k_2$ は入力光、 $k_3$ は和周波光の波数、 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ 、 $\lambda_3$ は自由空間波長、 $n_1$ 、 $n_2$ 、 $n_3$ は各周波数の光に対する屈折率である。異方性を持つ結晶の場合、光の進行方向と偏光の向きによって、屈折率が異なるので、結晶軸に対して、光軸および偏光の向きを適当に選ぶと、ある範囲内で位相整合条件を満足させることができる。入射光の偏光の向きが平行な場合をType I、互いに垂直な場合をType II位相整合と呼んでいる。入射光の波長を変更したい場合は、同時に高調波の波長も変わるわけだが、光軸に対する結晶の角度を調整して、位相整合条件を満足させるようにする。変換効率 $\eta$ は前述の $\Delta k$ 、結晶内の航路長 $L$ 、パワー密度 $P$ などに依存し、

$$\eta \propto PL^2 \left( \frac{d_{\text{eff}} \sin(\Delta k L)}{\Delta k L} \right)^2$$

\* 本研究は文部科学省学術フロンティア推進事業 (継続) (平成17~19年度) の支援を受けて行った。

<sup>1</sup> E-mail: [hayakawa@lebra.nihon-u.ac.jp](mailto:hayakawa@lebra.nihon-u.ac.jp)

である。ここで、 $d_{\text{eff}}$ は非線形光学係数で、非線形結晶の種類に依存する量である。従って、一般に入力光は結晶の損傷閾値を超えない範囲で細く絞られていた方が、効率が良い。

## 2.2 非線形光学結晶KTP

今回の実験で使用した非線形光学結晶KTPは、潮解性が無いため扱いやすく、非線形光学係数を大きくできるため、広く使われている結晶である。KTPは二軸性結晶なので、主屈折率の各成分の値はすべて異なる。カタログに記載されているセルマイヤーの分散式とフレネルの位相速度の公式から、各光線の位相速度が求められ、位相整合条件を満足する光軸の向きを求めることができる。光の自由空間波長と屈折率の関係も与えられるので、群速度も求めることができる。なお、実際の計算は中国の光学材料メーカーCASIXが公開している計算ソフトを使った。この結晶はType II位相整合により、大きな非線形光学係数を得ることができる。メーカーには基本波のFELの波長を1500nmとし、垂直入射で、SHGおよびTHGの位相整合ができる角度にカットした結晶を発送した。結晶の大きさは、SHG用、THG用共に12×12×7mm<sup>3</sup>で、直径1インチのホルダーに取り付けられている。SHG用の結晶は光軸が $\theta = 54^\circ, \phi = 0^\circ$ となるようにカットされていて、垂直入射する1500nmの光に対して、位相整合条件が満足される。入射波の波長が異なる場合は、結晶をy軸の廻りに回転させ、 $\theta$ を変化させることにより、位相整合条件を満足させる。波長範囲1400nm~1800nmに対して、 $\theta$ の変化はおよそ51°~57°である。

## 3. 高調波発生実験

実験は先ず、FELの波長を1500nmに設定して行った。FEL光は2面の凹面鏡によって集光し、結晶に入射した。上流側に曲率半径6mの鏡を、それよりおよそ2m下流に曲率半径0.8mの鏡を置き、合成焦点距離を0.85mとした。これらの鏡の曲率半径と配置には、たまたま手元にあったものを使用したもので特別な意味は無い。この集束系で集光した場合の最小スポットサイズは、実測値はないが、共振器ミラーのカップリングホルの直径が0.4mmであることから、

表1. 第2高調波発生時の基本波及び高調波のマクロパルス当たりのエネルギーと変換効率。効率の後の括弧内の数字は、入力エネルギーで規格化した相対的な変換効率。

1 <sup>st</sup> nm	2 <sup>nd</sup> nm	1 <sup>st</sup> mJ	2 <sup>nd</sup> mJ	effi. %
1400	700	~3	~0.15	5 (0.9)
1500	750	~4.5	~0.4	9 (1)
1600	800	~6	~0.45	7.5 (0.5)
1700	850	~7.5	~0.6	8 (0.6)
1800	900	~9	~0.3	3 (0.16)

途中の光学系の定数を考慮すると、直径がおよそ0.2mmと見積もられる。

### 3.1 第2高調波

前述のように、KTPではType IIの位相整合を行うため、互いに直交する偏光面をもつ基本波が必要である。LEBRA FELでは出力ポートの所で、水平方向に偏光している。従って、互いに直交する偏光面をもつ光を得るには、結晶を光軸に関して45度回転させる。結晶をこの向きに設置し、 $\theta$ の微調整することにより、第2高調波を発生させることができた。基本波1500nmの場合、第2高調波は750nmとなり、人の目が感度を持つ長波長側の限界に近く、最も感度の高い500nm近傍の感度に対して3000分の1程度の感度しかない。このため、非線形高調波の750nmの光は、フォトダイオードによって測定することはできないが、目では全く見えない。ところが、結晶から発生した同じ波長の光は、3次の非線形高調波(500nm)と同程度の明るさで、赤色のスポットして観測された。フォトダイオードで波形を測定する際も、NDフィルターによって3200分の1に減光して、非線形高調波と同程度の信号の大きさになった。結晶を通過した後の光をプリズムによって分光し、FELの波長を1400nmから1800nmまで変化させた場合の高調波のパワーを焦電効果を利用したパルスパワーメータによって測定した。結果を表1に示す。マクロパルス当たり3~9mJの基本波に対して、0.15~0.6mJ程度の出力を得た。変換効率は1500nmが最も高く、9%程度であった。変換効率は入力のパワーに比例するので、マクロパルス及びマイクロパルスの構造が、この波長範囲では変化しないと仮定して、変換効率を入力エネルギーで規格化した量を括弧内に示した。この結晶は前述のように、1500nmの光に対して、カット角と反射防止コートが最適化されているので、効率が最大となるのは妥当であるが、1800nmで効率が急に悪くなる理由は不明である。あるいは測定に問題があったかもしれない。図1はSi及びInGaAsのフォト

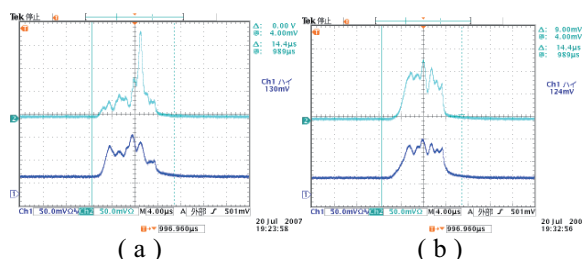


図1. フォトダイオードを使って測定した基本波ch1.及び第2高調波の波形ch2。(a)基本波と非線形高調波、(b)基本波とSHG。発生メカニズムの違いにより、波形が異なる。非線形結晶による変換効率がパワーに比例するため、(b)では、高調波の波形は基本波の波形を二乗したような形状をしている。

ダイオードを使って測定した基本波及び第2高調波の波形である。(a)は、基本波と非線形高調波、(b)は、基本波とSHGである。いずれも基本波が基になっているが、発光メカニズムが異なるため、波形が異なる。SHGの方は基本波の波形を二乗したような波形になっていることが確認された。

### 3.2 第3高調波

第3高調波は基本波と第2高調波の和周波として発生させる。位相整合条件はType IIである。第2高調波の偏光の向きの関係で、基本波の半分しか和周波発生には寄与しない。基本波の波長1400nmから1800nmにおいて、第3高調波の発生は確認できたが、パワーメータで測定できるレベルにはならなかった。フォトダイオードによる相対強度の測定では、非線形高調波の数倍から10倍程度の強さにはなっている。

## 4. 群速度と変換効率

第2高調波発生である程度の変換効率を得られたので、そのパルス長を干渉計を使って測定した。基本波と高調波の群速度の違いから、高調波のパルス長は基本波よりずっと長くなると予想していた。実際に測定してみると、基本波の長さは、以前に測定した時<sup>[1]</sup>と大差なく、半値全幅で50 $\mu$ m程度であったが、予想に反して、高調波のパルス長は基本波より少し短く、40 $\mu$ m程度であった。これは、結晶のごく一部しか高調波発生に寄与していないことを意味する。この問題を理解するために、関与する光のパラメータを検討した。表2に基本波の波長が1500nmの場合で、位相整合条件が成立している場合の屈折率と、波束が10mm厚の結晶を通過するのに要する時間、即ち10mmを群速度で除した値をps単位で示した。n1は偏光の向きがy軸に平行な成分、n2は垂直な成分である。表の網掛けで表示した成分が位相整合条件を満足している。ここで注目すべきは通過時間で、二つ基本波は偏光の向きによって、10mmの結晶を通過するのに1.788psもの時間差がある。一方パルス幅は、全幅でも自由空間で100 $\mu$ m程度、時間では、0.33ps程度である。従って、偏光の向きの異なる2つの基本波は、結晶中を2mm程度進むと完全に前後に分かれてしまい、高調波は発生しなくなる。有効な相互作用領域はおそらく1mm程度

表2. 第2高調波発生に関与する光の成分。n1,n2は屈折率で、各々、偏光の向きがy方向の成分と、y軸に直角な成分。L/v1,L/v2は、各成分の光の波束が10mm厚の結晶を通過するのに要する時間。網掛けの部分が、位相整合条件を満足する成分。

	1500 nm	1500 nm	750 nm
n1	1.738	1.738	1.762
n2	1.787	1.787	1.815
L/v1 ps	58.792	58.792	60.364
L/v2 ps	60.580	60.580	62.584

であろう。第2高調波のパルス幅が基本波よりも短いのはこの相互作用領域の短さに起因すると考えられる。

第3高調波を発生する結晶についてはさらに深刻である。これはSHG用結晶の下流に置かれるが、この結晶内での分散によって、基本波1、第2高調波、基本波2の順番に結晶から出てくる。それぞれの時間差は1.1ps、0.15psである。第3高調波発生に寄与するのは、第2高調波と基本波2である。THG結晶内では基本波2の群速度の方が第2高調波よりも速くなり、これを追い越して行くときに第3高調波が発生する。群速度の差は大きく、相互作用する領域は0.5mm程度であると考えられる。従って、第3高調波の変換効率が小さいのは当然である。

## 5. まとめ

今回の一連の実験によって幾つかの点が明らかになった。すなわち、パルス幅が短いため、KTPを使ったType IIの位相整合は、元になる光の群速度の違いにより、結晶のごく一部でしか相互作用が起きず、変換効率を大きくできない。しかし、現状でも第2高調波については、基本波の10%程度の出力は期待できるので、分野によっては利用できる強度である。第3高調波については、非線形高調波より数倍から10倍ほど強い程度なので、利用実験は限られている。しかし、非線形高調波の代替にはできると思われる。

より強い高調波の発生が求められるが、まずは基本波のパワーを向上させ、もっとビームスポット径を小さくする光学系が必要であろう。結晶に関しては、群速度のマッチングができるような材料が求められる。現在調査している範囲では、BBO( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)が有力であるが、さらに検討を進める。第2高調波の変換効率が十分大きくできれば、第4高調波も基本波の数%以上の変換効率が期待できるので、こちらの検討も進めている。

## 参考文献

[1]K.Hayakawa, K.Yokoyama, K.Nakao, I.Sato, T.Tanaka, Y.Hayakawa, "Measurement of the pulse length of the FEL nonlinear harmonics radiation", Proc. of the 1<sup>st</sup> Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29<sup>th</sup> Linear Accelerator Meeting in Japan, 2004 Funabashi Japan, pp649651-485

表3. 第3高調波発生に関与する光の成分。n1,n2は屈折率で、各々、偏光の向きがy方向の成分と、y軸に直角な成分。L/v1,L/v2は、各成分の光の波束が10mm厚の結晶を通過するのに要する時間。網掛けの部分が、位相整合条件を満足する成分。

	1500 nm	750 nm	500 nm
n1	1.738	1.762	1.798
n2	1.799	1.828	1.874
L/v1 ps	58.792	58.792	64.140
L/v2 ps	61.015	63.128	68.579