

VISIBLE LASER GENERATION BY USING NLO CRYSTAL AT LEBRA

Ken Hayakawa[#], Toshinari Tanaka, Yasushi Hayakawa, Keisuke Nakao, Kyouko Nogami, Manabu Inagaki
 Laboratory for Electron Beam Research and Application, Institute of Quantum Science of Nihon University
 7-24-1 Narashinodai Funabashi, 274-8501

Abstract

Mysterious behavior appeared in a wavelength dependency of the transfer efficiencies from FEL to the second harmonics by using the NLO crystal are solved. These phenomenon disappeared by changing the material of the output window from sapphire to calcium fluoride CaF₂. Wavelength dependencies of the transfer efficiencies were measured again with several focal lengths of the concaved mirror of the injection optics system. Contrary to expectation, these are nearly identical though the focal lengths change from 400mm to 1500mm. It seems that the reason is in the relatively large walk-off angle of the BBO crystal.

LEBRA FEL における非線形光学結晶による可視光レーザーの発生

1. はじめに

LEBRA-FEL は赤外領域 (1.4~6 μ m) で安定な発振を実現し、利用研究に供給している。自由電子レーザーの持つ連続波長可変性、極短パルスで高いピーク出力を近赤外、可視光領域でも利用したいという要求があり、施設としてもその対応を検討してきた。この波長領域で FEL を発振させることがこの要求に答える最も真つ当な方法であるが、よく知られているように、FEL は短波長になるほど利得が小さくなり、電子ビームに要求される特性も厳しいものになる。さらに光共振器を構成する鏡の耐性の問題もあり、加速器と FEL 発生装置双方を改造しなければならず、早急を実現するのは難しい。これに代わって、非線形光学結晶を用いた高調波の発生により近赤外、可視光領域のレーザー光を得る方法を試みている。

既に報告したように^[1,2]、非線形光学結晶 KTiOPO₄(KTP) と β -BaB₂O₄(BBO) について実験を行った。これらの実験から、KTP は Type II と呼ばれる位相整合条件を使うことになるため、偏光の向きが互いに直行する直線偏光の基本波を入射するが、結晶中での群速度がそれぞれ異なるため、LEBRA-FEL のように極短パルスの場合結晶中で空間的に乖離し相互作用長が限定される。また、second-harmonic generation (SHG)の臨界波長が 1 μ m 近傍にあるため、この波長に近づくと位相整合角の波長依存性が大きくなるなど、やや使いづらい面がある。この点、BBO は Type I の位相整合条件が使えるため、結晶中で基本波のパルスが空間的に乖離することは無い。また、SHG の臨界波長は 500nm 以下であり、短い波長まで SHG が使える利点がある。

ここでは BBO を使った SHG を系統的に調べた結果を報告する。また、昨年まで非線形光学結晶による高調波発生の実験を行うには不適切な実験室で測定していたため、一見不可解な結果が得られた顛末

も報告する。

2. 変換効率の奇妙な波長依存性

BBO による SHG の効率の波長依存性を測定している時、奇妙な現象を見出した。この時は基本波の波長を 1400nm から 1800nm と比較的狭い範囲で、しかしステップは狭く 20nm 毎に位相整合条件を満足させた状態で第 2 高調波の強度を測定した。結果を図 1 に示す。この図で縦軸は変換効率に比例する量であり、ほぼ 100nm 周期で振動しているように見える。変換効率は概ね基本波の強度に比例するが、この実験の時、基本波の強度は短波長側から長波長側に向かって、ゆるやかに増加しており、この図のような変換効率の波長依存性をもたらすとは考えられない。以前は 100nm ステップで測定していたため、このような構造が見えなかったのである。

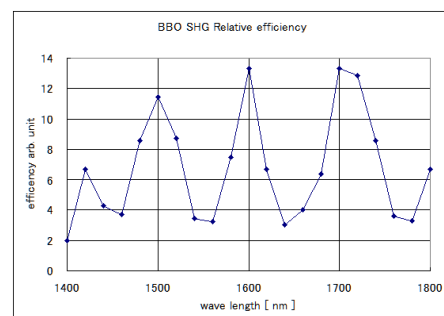


図 1. 第 2 高調波発生の変換効率の異常な波長依存性

このような振舞いを非線形光学結晶の特性から導くことはできそうはないので、他に原因を求めなければならなかった。すなわち、光学系の他の素子のどれかにその原因があると思われた。非線形光学結晶における位相整合は結晶中を伝播する光の偏光の向きによる位相速度の違いを利用しているため、変換効率は基本波の偏光の状態の変化には敏感である。このことを考慮して、偏光の状態を変える可能性のある素子に注目した。

[#] hayakawa@lebra.nihon-u.ac.jp

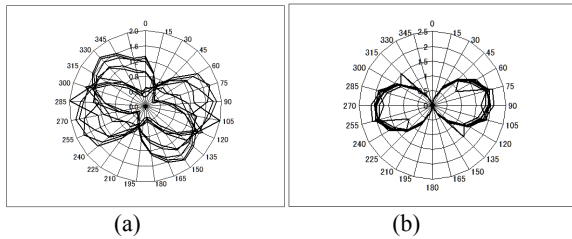


図2. 窓を通過した FEL の偏光の向き、(a)サファイア窓、(b)CaF₂窓。図形の長軸方向が偏光の向き。

入射光学系に使っているアルミ全反射鏡は保護膜として MgF₂ がコーティングされている。MgF₂ の結晶は一軸性の結晶となり、偏光の状態に影響を与えるが、保護膜は非晶質であるため、その可能性は排除される。各実験室における FEL の取り出しポートでは、真空中に排気されたビーム輸送系から大気中に FEL を取り出すために、透明な窓が取り付けられている。この窓材には、機械的強度に優れていることと広い波長帯域で高い透過率を持つサファイアの単結晶が使われていた。このサファイアもまた一軸性の結晶であるため、偏光の状態に影響を与えるはずである。このことを確認するため、偏光の測定を行った。窓を通過して取り出された FEL のビームライン上にパワーメーターと偏光板を置き、偏光板の角度とそれを通過した FEL パワーの相関を見るといったって簡単な仕掛けで測定できる。波長 1400nm から 2300nm にわたって測定した結果を極座標でプロットしたものが図 2 (a) である。原点から曲線上に引いた動径の長さがその方向の偏光成分の大きさを示す。直線偏光では、交点が原点と一致する 8 の字形の曲線となり、その長軸の向きが偏光の向きとなる。図 2 (a) からわかるように、曲線の長軸の向きが広い角度範囲に拡散しており、また、曲線は原点を通過していない。これはサファイア窓により、本来の直線偏光から楕円偏光へと偏光の状態が変化したことを意味するものであろう。このような特性の窓は明らかに不都合であるが、窓を通過する以前にすでに偏光の状態が変化していた可能性もあるので、CaF₂ の単結晶の窓に交換して、同じ測定を行った。CaF₂ は機械的強度ではサファイアに劣るものより広い波長範囲で透明であり、何よりも等方結晶であるため、偏光の状態に影響を与えない優れた窓材である。測定結果を図 2 (b) に示す。この図では曲線は先に述べた直線偏光の場合に特有な形状を示しており、長軸の向きも波長によって変化していない。従って、FEL は確かに直線偏光の状態を保ったまま実験室まで到達するが、サファイア窓を通過する時

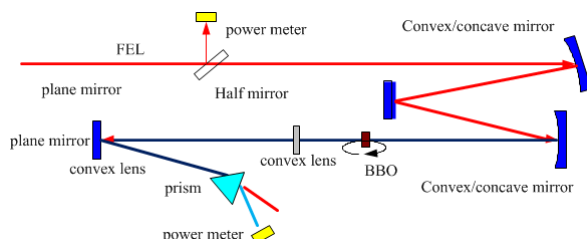


図3. SHG 変換効率測定のためのセットアップ。焦点距離に応じて、適当な位置の鏡を凹面鏡にする。

に偏光の状態が変化し、しかも波長によって変化の仕方が異なるため、図 1 のような結果得られたことが明らかとなった。CaF₂ の窓を使えば、偏光の状態に変化を与えずに取り出せることが同時に確認されたため、以降の実験はすべてこの窓を使っている

3. 変換効率の波長依存性

3.1 測定

極短パルスの第 2 高調波を発生させる非線形光学結晶としては、先に述べたように、Type I の位相整合条件の使える素子が適しており、また広帯域で使用するには波長による位相整合角の変化が小さいことが望ましい。これらの条件を満足する素子として、BBO を取り上げ、その変換効率を測定した。以前の測定はサファイア窓を通過した光を使っていたため正確ではなかった。上記のように BBO はすぐれた特性を持つ素子であるが、反面、Acceptance angle が小さく、Walk-off angle が大きいという不都合な特性も持つ。これらを踏まえて、基本波の最適な入射条件を探るため、集光用凹面鏡の焦点距離を 400mm から、1500mm まで変化させた時の SHG の変換効率を基本波の波長 1400nm から 2600nm の帯域で測定した。測定のセットアップを図 3 に、 $f = 400\text{mm}$ の場合の変換効率の実験値を図 4 に示す。

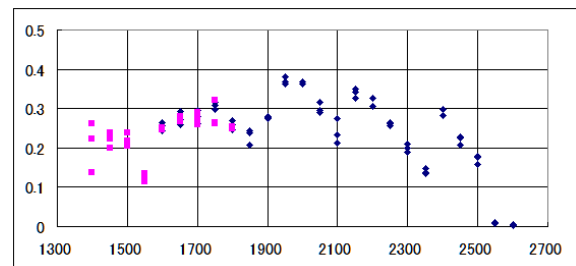


図4. 焦点距離 400mm で計測された SHG の入射パワーで規格化されていない変換効率。点の色の違いは電子エネルギーの違いに対応している。

この図では波長 2550nm 以上の点を除いて概ね 0.15 から 0.35 の間に分布している。ここで変換効率と称しているのは正確にはパワーの比ではなく、マクロパルス当たりのエネルギーの比である。変換効率は正しくは、マイクロパルスのパワーの比をとらなければならないが、マイクロパルスのパワーを直接測定するのは難しい。マクロパルスのエネルギーとマイクロパルスのパワーの関係は大きくは変動しないと考えられるので、前者は後者にほぼ比例していると仮定した。しかし、変換効率は基本波のパワーに依存するので、このままでは比較できる数値にならない。位相整合条件が満足されている場合、SHG の変換効率 η はそれが低いときは

$$\eta = \frac{P_2}{P_1} = (\kappa L)^2 = \frac{2\pi^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{\epsilon_0 c n_1^2 n_2 \lambda^2 A} P_1 \quad (1)$$

となる。ここで d_{eff} は有効非線形係数、 L は結晶長、

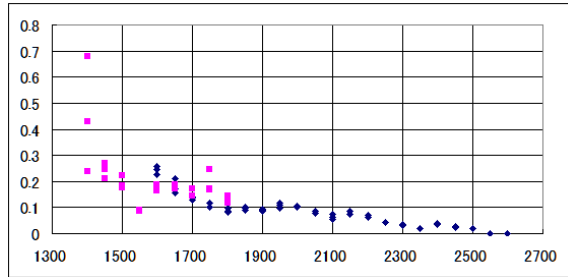
ϵ_0 は真空の誘電率、 c は光速、 n は屈折率、 λ は波長、 A は光の断面積、 P はパワー、下付き文字 1、2 は夫々、基本波、第 2 高調波に関する物理量であることを表す。変換効率がよく、基本波の減衰を無視できない場合は

$$\eta = \tanh^2(\kappa L) \quad (2)$$

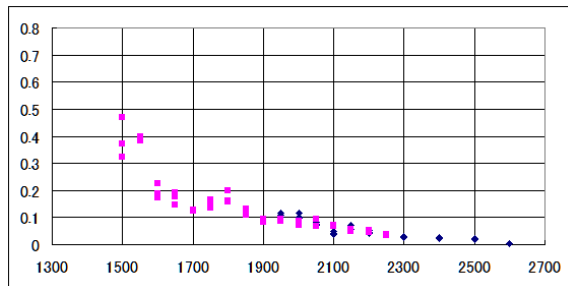
となる^[3,4]。この式を用いて適当な基本波のパワーに換算すれば比較できる量になる。この際、規格化する基本波のパワーを大きくしすぎると出力が飽和してしまい、差異が認められなくなる。ここでは 1mJ/pulse で規格化したものを図 5 に示す。意外にも、少なくとも 1700nm より長い波長ではデータ点のばらつきを考慮すれば、ほとんど差が認められない。短波長側で $f = 400\text{mm}$ の場合の変換効率が他の焦点距離に比べ、小さいよう見える。

3.2 Walk-off angle の影響の評価

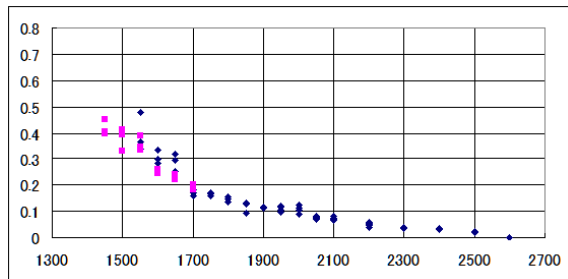
LEBRA の FEL は光共振器ミラーの一方に穿たれた穴を通して取り出され、補償光学系によって、平行ビームになり、ブラウンホーファーの回折パターンを維持したまま実験室まで導かれる。この光を集



f = 400



f = 1000



f = 1500

図 5. 基本波のパワーを 1mJ/pulse で規格化した変換効率。入射光学系の焦点距離にあまり依存しない。色の違いは電子エネルギーの違いに対応している。

光した場合、収差を考慮しなければ、半径

$$w_0 = \frac{\lambda}{\pi NA}$$

の理論集光限界のウエストを持つ。ここで NA は開口数で、FEL ビームラインにおけるビームの有効半径を D とおけば、 $D \ll f$ ならば、 $NA \sim D/f$ である。従って

$$w_0 \approx \frac{f\lambda}{\pi D}$$

である。ウエストにおけるビーム断面積は波長及び焦点距離の 2 乗に比例することになる。従って、

(1) 式より、変換効率が低い波長領域では他の係数の波長依存性があまり大きくなければ変換効率は概ね波長の 4 乗に反比例することになる。図 5 は波長が短くなるのに従って変換効率が高くなる状況は再現している。しかし同様の考察で、凹面鏡の焦点距離の 2 乗に反比例しなければならないことになるが、そうはなっていない。これを説明するためには先に述べた BBO の Acceptance angle が小さく、Walk-off angle が大きいという特性を考慮しなければならない。ビーム径と Walk-off angle との兼ね合いで、第 2 高調波が距離の 2 乗に比例して成長できる長さがきまる。この目安として通常

$$La = \frac{2w_0}{\rho}$$

で定義される Aperture length La ^[5]なる量を導入する。ここで ρ は Walk-off angle である。これは、基本波と第 2 高調波が横方向に乖離するまでの距離である。この長さが L より短ければ変換効率は L ではなく La の 2 乗に比例することになる。そこで L を La に置き換えて変換効率のビーム径が関係する項をまとめると

$$\eta \propto \frac{La^2}{A} = \left(\frac{2w_0}{\rho} \right)^2 \frac{1}{\pi w_0^2} = \frac{4}{\pi \rho^2}$$

となり、ビーム径は変換効率に無関係となる。すなわち、 $L > La$ が成立する範囲では変換効率は収束系の焦点距離に依存しない。また、これに関連して、波長依存性も波長の 4 乗ではなく、2 乗に反比例することになる。実験値の挙動は、短波長側では変換効率がこれで予想されるよりも早く増加しているように見える。

3.3 Acceptance angle の影響の評価

集光したビームのウエスト近傍では波面の形の変化に伴って光の進行方向も変化する。包絡線の形状は

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2}$$

のような双曲線となる。ここで z_R はレーリー長、

$w(z)$ はウエストの位置からの距離 z の点のスポットサイズである。この $w(z)$ なる関数の z に関する微分がこの点における傾きの最大値となる。光軸を位相整合条件が満足される向きにとればこの値が結晶の Acceptance angle と比較すべき量である。ウエストを通過後傾きの符号が逆になるので、光路に沿って蓄積される位相のずれは、ウエスト通過後は逆に、減少するようになる。従って、 $La/2$ までの長さの位相のずれを考慮すればよく、この長さに対する Acceptance angle $\Delta\theta_{ac}$ と $z = La/2$ の位置における傾き $\Delta\theta_{max}$ を比較する。数値をあたってみると、どの焦点距離の場合も Acceptance angle の方が大きくなっている。従って、BBO の場合、変換効率を制限しているのは主に Walk-off angle であると思われる。表 1 に波長 $2\mu\text{m}$ の場合の入射光学系の各焦点距離における w_0 、 La 、acceptance angle、maximum angle を示す。実際には収差があるのでこの通りにはならないが、傾向を知ることはできるであろう。今回使用した BBO の結晶長は 5mm であるが、Aperture length を考慮すれば、焦点距離 1500mm の場合でも 2mm 程度の長さで十分ということになる。焦点距離を大幅に変化させても変換効率にあまり影響しないのならば、系をコンパクトにまとめるには焦点距離が短い方が良いが、結晶の耐性を考えれ

表 1 波長 $2\mu\text{m}$ の場合の、各焦点距離に対する各種パラメータの値。

f	[mm]	400	1000	1500
w_0	[mm]	0.013	0.032	0.048
La	[mm]	0.486	1.216	1.824
$\Delta\theta_{ac}$	[mrad]	48.523	19.409	12.939
$\Delta\theta_{max}$	[mrad]	34.532	7.137	3.290

ば、焦点距離の長い方が有利であろう。

4. まとめと考察

昨年、FEL の SHG 発生効率に奇妙な波長依存性が見出されたが、これは FEL の取り出しにサファイア窓が使われていることが原因と判明、 CaF_2 の窓に交換することによりこの現象は見られなくなった。変換効率の波長依存性を収束系の焦点距離を変えて測定した。意外なことに、 $f = 400$ から 1500 まで変化させてもあまり変化はなかった。これは、比較的大きな walk-off angle により、結果的にそうなるようである。

電子加速器と光共振器の調整によって、FEL のマイクロパルス幅と出力レベルは様々に変化する。従って、パルス当りのエネルギーが同じであってもマイクロパルスの構造は必ずしも同じではない。パルス毎にも微妙に変動しているはずである。このため、パルス当たりのエネルギーで規格化した変換効率の値がばらつくものと考えられる。長波長側はゲインが大きいため、比較的安定しているが、短波長側は不安定でばらつきが大きくなるようである。また、FEL の飽和レベルは概ね波長に反比例するので、ミ

クロパルスのピークパワーが大きくなり、変換効率も相対的に大きくなると考えられる。この計測手法が確立すれば、変換効率から逆にマイクロパルスのパルス幅とピークパワーを求めることができるようになるかもしれない。

図 4 で顕著に表れているように、波長が 2550nm より長い領域は急激に変換効率の下がり、ほとんどゼロになっている。BBO は波長 2200nm を超えると徐々に透過率が下がり、 2500nm 近傍で一旦上がるが、その後再び下がり始める。波長 2600nm では、 2400nm あたりとほぼ同じ透過率である。波長 2400nm では、特に変換効率小さくなっているわけではないので、透過率が低いことが理由でこのような現象が起きているとは考えにくい。この波長領域で急激に変化する結晶のパラメータは無いようなので、この現象については目下、原因不明である。

高調波発生に最適な光学系を構築するために、ビーム径の実測やパルス幅の測定など、計測の精密化を進める必要がある。

第 2 高調波をもう一度非線形結晶を通して第 4 高調波を発生させる forth-harmonic generation FHG の系統的な測定も準備中である。波長が短くなるほど変換効率が向上しているの、大いに期待できそうである。

参考文献

- [1] K.Hayakawa, et al "Harmonic generation of the FEL using NLO", Proc. of the 4th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 32th Linear Accelerator Meeting in Japan, 2007 Wako Japan, pp583-585
- [2] K.Hayakawa, et al "Harmonic generation of the FEL using NLO II", Proc. of the 5th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 33th Linear Accelerator Meeting in Japan, 2008 Higashihiroshima Japan, pp803-805
- [3] 黒田和男, "非線形光学" 初版、東京、コロナ社、2008
- [4] Robert W. Boyd "Nonlinear Optics", Third edition, Elsevier, New York 2007
- [5] V.V.G.Dmitriev, G.G.Gurzadyan and D.N.Nikogosyan "Handbook of Nonlinear Optical Crystals", Third edition, Springer, Moscow 1999