

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 18 日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21360026

研究課題名（和文） フェロエレクトリック半導体による近中赤外超短パルス位相共役光学

研究課題名（英文） Optical phase conjugation based on a ferroelectric semiconductor

研究代表者 尾松 孝茂 (OMATSU TAKASHIGE)

千葉大学・大学院融合科学研究科・教授

研究者番号：30241938

研究成果の概要（和文）：

「フェロエレクトリック半導体」は強誘電体としての大きな非線形性と半導体としての桁違いに速い時間応答をかねそなえ、これまで位相共役鏡の未踏波長領域であった近中赤外(1～1.6 μm)帯で大きなフォトリフレクティブ活性を示す新しい材料である。

本研究の目的は、「フェロエレクトリック半導体」の一つ $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ (SPS) 結晶の性能 (高反射率、超広帯域、超高速応答、高光損傷閾値)を極限まで引き出し、近中赤外(1～1.6 μm)の超短パルス光に対する革新的な位相共役鏡を構築することにある。

研究成果の概要（英文）：

Photorefractive nonlinear wave mixing at the telecommunication wavelength 1.55 μm has been intensely investigated, because it enables us potentially to demonstrate beam combination, beam cleanup, and optical phase conjugation in combination with fiber optics. Photorefractive at this wavelength regime has been investigated mostly in semiconductors such as CdTe:V, since conventional ferroelectric materials, i.e., Rh doped BaTiO₃ has property of very poor photorefractive sensitivity at this wavelength. However, the CdTe:V requires an additional large alternating current (AC) electric field (~4 kV/cm) and 1.3 μm stimulating illumination to achieve an efficient photorefractive two wave mixing gain.

In this work, we investigate 1.55 μm photorefractive phase conjugation in a ferroelectric semiconductor material, tin thiohypodiphosphate ($\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$, SPS), showing a relatively narrow band gap (~2.3 eV), a high charge mobility, as well as a large dielectric constant.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
2010年度	6,100,000	1,830,000	7,930,000
2011年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2012年度			
2013年度			
総計	13,600,000	4,080,000	17,680,000

研究分野：応用物理学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用工学・量子光工学

キーワード：非線形光学・フォトリフレクティブ効果・フェロエレクトリック半導体・レーザー

位相共役波は空間反転性を示す光である。位相共役波を発生する位相共役鏡(動的ホログラム)をレーザー共振器内に含むレーザー(ホログラフィックレーザー)は、レーザーシステムに現れる熱光学効果をはじめとするすべての擾乱をレーザー自身が自動補償し、常に安定したレーザー出力と空間モードを保証する次世代レーザーである。

研究代表者はRhドーパBaTiO₃結晶からなる位相共役鏡と、1000倍を越えるレーザー利得を示す側面励起イットリウムバナデート(Nd:YVO₄)スラブ増幅器を世界ではじめて超短パルスレーザーに応用し、高い平均出力(>30W)、高いピークパワー(>3MW)、高い繰り返し周波数(>100kHz)、高いビーム品質を誇るピコ秒パルスホログラフィックレーザーを開発した既存の高出力ピコ秒レーザーの性能をはるかに凌駕するこのレーザーは、EUV光からTHz光までのあらゆる波長変換に対応できる光科学の次世代標準光源となりうる革新的なレーザーである。

これまで用いてきたRh:BaTiO₃結晶では、いかにRh濃度、結晶方位、屈折率格子間隔を最適化しても、波長帯域幅と応答速度がトレードオフの関係にあり近赤外超短パルス光に対して時間応答性が極端に悪い(~数10秒)、室温付近に相転移温度(~10度)があり結晶を冷却できないので高出力レーザーに対して光損傷が起りやすい(損傷閾値はCW光に対して<50W/cm²)、1.06μmより長波長ではフォトリフラクティブ活性がなく位相共役波が発生しない、など数々の問題が残る。実際、Rh:BaTiO₃結晶を用いている限り、平均出力100W、パルスエネルギー1mJがパワースケーリングの限界である。また、高次高調波発生や分子分光や環境計測で注目を集める近中赤外(1~1.6μm)帯の超短パルスレーザーには対応できない。

フォトリフラクティブ効果を示す結晶は強誘電性結晶と半導体結晶に大別される。強誘電性結晶の代表がBaTiO₃で半導体結晶の代表がInPである。強誘電性結晶は非線形性(二光波混合利得)が大きいものの応答速度が遅く、半導体結晶は時間応答が速いものの二光波混合利得が小さいというフォトリフラクティブ結晶の常識が位相共役鏡応用の大きな壁であった。Sn₂P₂S₆(SPS)結晶は大きな自発分極を示す強誘電性結晶でありながらバンドギャップがせまく(~2.3eV)、半導体的な性質も示し電荷移動しやすい。このような特性を示す結晶を「フェロエレクトリック半導体」とよぶ。BaTiO₃結晶よりやや小さいもののSPS結晶の二光波混合利得は十分に大きく(~5cm⁻¹@1.06μm)、位相共役波の立ち上がり時間もBaTiO₃結晶より3桁以上速い(~80ms@10W/cm²)。(T. Bach, M. Jazbinsek, et.al. Opt. Exp. 13 (2005) 9890-9896.)

また、TeやSbを不純物として添加することでチタンサファイアレーザーから半導体レーザー励起固体レーザーのほぼすべての波長を含む0.8-1.6μmにおいてフォトリフラクティブ活性を示す。室温付近に相転位温度(~10度付近に相転移温度があるBaTiO₃結晶は強冷却すると結晶自身が壊れる)がないため、冷却さえすれば結晶の光損傷が回避できる。光損傷閾値も高い(CW光に対して>100kW/cm²)。しかしながら、これまでフェムト秒からピコ秒の超短パルス光における位相共役波発生をはじめとする光波混合の実験は一切行われておらず、この結晶の超短パルス光に対するフォトリフラクティブ効果は未知であった。

2. 研究の目的

「フェロエレクトリック半導体」は強誘電体としての大きな非線形性と半導体としての桁違いに速い時間応答をかねそなえ、これまで位相共役鏡の未踏波長領域であった近中赤外(1~1.6μm)帯で大きなフォトリフラクティブ活性を示す新しい材料である。本研究の目的は、「フェロエレクトリック半導体」の一つSPS結晶の性能(高反射率、超広帯域、超高速応答、高光損傷閾値)を極限まで引き出し、近中赤外(1~1.6μm)の超短パルス光に対する革新的な位相共役鏡を構築することにある。この位相共役鏡を用いれば、近中赤外域における極限高品質高出力(>100W、>10MW)超短パルスレーザーの創成や時間反転パルス光発生や極限パルス圧縮など、近中赤外の超高速レーザー工学や光科学に新たなブレークスルーをもたらす。

3. 研究の方法

本研究では、「フェロエレクトリック半導体」の一つSPS結晶の性能(高反射率、超広帯域、超高速応答、高光損傷閾値)を極限まで引き出し、近中赤外の超短パルス光に対する革新的な位相共役鏡を構築することにある。この位相共役鏡を用いれば、究極の近中赤外高品質高出力(>100W、>10MW)超短パルスレーザーの創成など、近中赤外の超高速レーザー工学や光科学に新たなブレークスルーをもたらす。以下、具体的な研究方法を記載する。

(1)1μmピコ秒パルスレーザーに対するSPSの二光波混合特性

Chemical vapor-transport法で育成したSPS結晶を取り上げ、1μmピコ秒パルスレーザーによる二光波混合利得を測定する。特に、結晶中に形成されるフォトリフラクティブ回折格子の回折格子間隔依存性、二光波混合利得の過渡応答性に注目し、光誘起キャリアの拡散、ホットエレクトロンの生成消滅、不純物準位の寄与、フォトリフラクティブ回折格子

の形成などのフォトリフラクティブ結晶で誘起されるダイナミクスについて解析する。

(2)1 μm ピコ秒パルスレーザーに対する SPS 結晶の自己励起位相共役波特性

応用面から考えて位相共役波発生には、対向ポンプ光を必要としない自己励起型が望ましい。本研究では、リング型位相共役鏡における位相共役波発生特性について解析する。リング型位相共役鏡では、二光波混合利得、結晶内部の光吸収損失、結晶内部に形成されるフォトリフラクティブ回折格子の波長選択性で反射率は決まる。Rh:BaTiO₃ に比べ二光波混合利得は低いものの光吸収の少ない SPS を用いることで、Rh:BaTiO₃ とほぼ同レベルの反射率が期待できる。に解析する。

(3)SPS 結晶を用いたピコ秒パルスホログラフィックレーザー

フォトリフラクティブ位相共役鏡の一つの大きな問題点は、非線形光学現象の起源が光吸収にあることである。Rh:BaTiO₃ 結晶の場合、相転移温度が室温付近(~10 度)にあるため、結晶を冷却して結晶中の熱負荷を逃がすことが難しい。その結果、高出力レーザー入射時に伴う結晶温度上昇がデポーリングを引き起こし、結晶の光損傷の原因になる場合がある。SPS は室温付近に相転移温度ないので、十分に冷却さえすればデポーリングは完全に回避できる。

フォトリフラクティブ位相共役鏡を用いたホログラフィックレーザーの出力を制限する最大の要因は Rh:BaTiO₃ 結晶の発熱による性能劣化にあり、出力の上限値は~100W である。SPS 結晶を新規に用いることで 100W の壁を超えることも可能になる。開発してきたピコ秒ホログラフィックレーザーの Rh:BaTiO₃ の代わりに SPS を配置しレーザーの性能評価を行う。

(4)1.5 μm 超短パルスレーザーに対する SPS 結晶の二光波混合特性

SPS 結晶の 1.5 μm 超短パルスレーザーによる二光波混合利得を測定する。特に、結晶中に形成されるフォトリフラクティブ回折格子の回折格子間隔依存性、二光波混合利得の過渡応答性に注目し、光誘起キャリアの拡散、ホットエレクトロンの生成消滅、不純物準位の寄与、フォトリフラクティブ回折格子の形成などのフォトリフラクティブ結晶で誘起されるダイナミクスについて解析する。すでに 1.5 μm 帯では、1 光子吸収以外に 2 光子吸収も寄与することが分かっている。ピコ秒パルスレーザーとフェムト秒パルスレーザーを使い分け二光波混合利得を計測する。

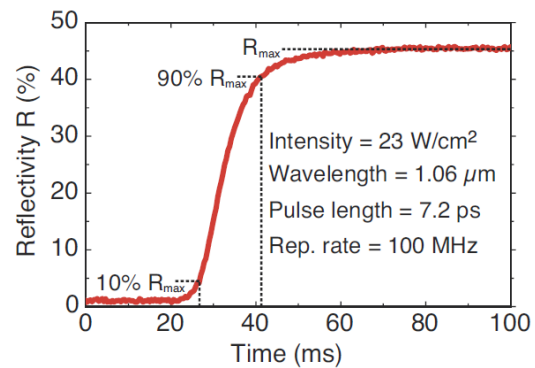
4. 研究成果

(1)1 μm ピコ秒パルスレーザーに対する SPS の二光波混合特性

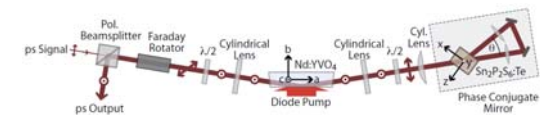
波長 1064nm、パルス幅 6ps の超短レーザーに対して最低でも 4cm⁻¹($\Gamma = 2.8$)以上の二光波混合を示すことが分かった。この値はいわゆる対向ポンプ光を必要としない自己励起型位相共役波発生(反射率は 55%程度と予測される)が可能な十分大きな値であった。

(2)1 μm ピコ秒パルスレーザーに対する SPS 結晶の自己励起位相共役波特性

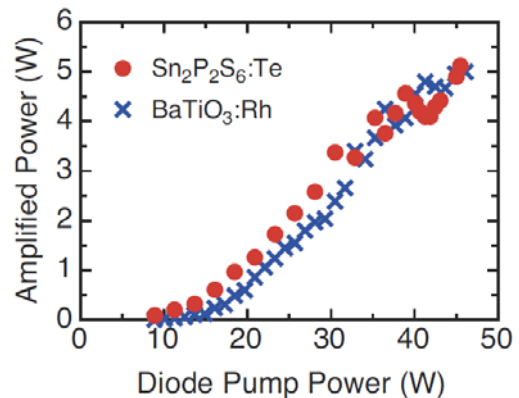
波長 1064nm、パルス幅 6ps の超短レーザーに対して、位相共役波反射率 45%を観測した。立ち上がり時間も CW レーザー使用時(~80ms)に比べ、はるかに速い(~10ms)ことが実験的に確認できた。



(3)SPS 結晶を用いたピコ秒パルスホログラフィックレーザー



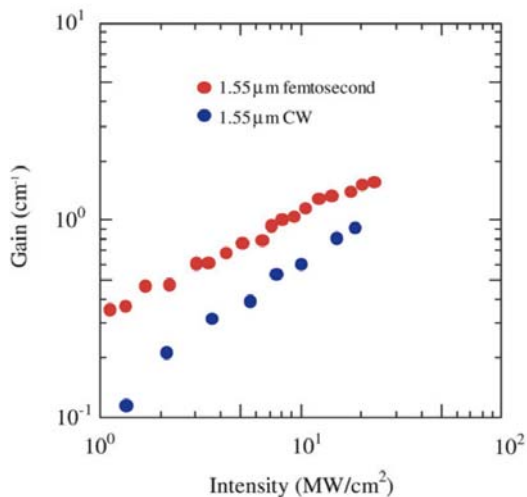
1 μm レーザーに対する SPS 結晶の性能が評価できたので、実際に SPS 結晶からなる位相共役鏡を側面励起 Nd:YVO₄ レーザー増幅器と組み合わせた位相共役レーザーシステムを構築した。最大出力 6W に達する高品質ピコ秒レーザーが開発できた。励起光パワーの変



化に対する応答速度も 1 秒以下と BaTiO₃ 結晶に比べ格段に速い性能が得られた。

(4)1.5μm 超短パルスレーザーに対する SPS 結晶の二光波混合特性

SPS 結晶の 1.5μm 超短パルスレーザーによる二光波混合利得を測定した。Te ドープの SPS 結晶は 1.5μm 帯で 1 光子吸収と二光子吸収を示すため、CW レーザーとフェムト秒レーザーを使い分けて二光波混合利得の測定を行った。CW レーザーによる 1 光子吸収励起では、二光波混合利得は最大でも $\sim 1\text{cm}^{-1}$ であった。SPS 結晶では、Te イオンがフォトリフラクティブ活性因子として有効に機能していることを示す。また、フェムト秒レーザーを励起光源に用いた場合、フェムト秒レーザーの光強度に比例して吸収が増え、二光波混合利得は 1.68cm^{-1} まで向上する。これは二光子吸収がフォトリフラクティブ活性を増強することを意味する。これに対して、強誘電体フォトリフラクティブ結晶として代表的な Rh:BaTiO₃ 結晶は CW 光に対して二光波混合利得が全く示さなかった。このことから SPS 結晶は、近中赤外で有効なフォトリフラクティブ結晶であることが分かった。



5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件) すべて査読有。

- 1) "Photorefractive two-wave mixing at 1.55 μm based on two-photon absorption in a Rh doped BaTiO₃ and Te doped Sn₂P₂S₆ crystals", K. Toyoda, K. Miyamoto, T. Omatsu, A.A. Grabar, Laser and particle beams, **30**, 137-139 (2012)
- 2) "Optical vortex pumped mid-infrared optical parametric oscillator," K. Miyamoto, S. Miyagi, M. Yamada, K. Furuki, N. Aoki, M. Okida, T. Omatsu, Opt. Express, **19**, 13 (2011) 12220-12226.

- 3) "Power scaling of a picosecond vortex laser based on a stressed Yb-doped fiber amplifier," M. Koyama, T. Hirose, M. Okida, K. Miyamoto, T. Omatsu, Opt. Express, **19**, 2 (2011) 994-999.
- 4) "Metal microneedle fabrication using twisted light with spin", T. Omatsu, K. Chujo, K. Miyamoto, M. Okida, K. Nakamura, N. Aoki, R. Morita, Opt. Express, **18**, 17 (2010) 17967-17973.
- 5) "1.3-μm passive Q-switching of a Nd-doped mixed vanadate bounce laser in combination with a V:YAG saturable absorber", T. Omatsu, K. Miyamoto, M. Okida, A. Minassian, M.J. Damzen, Appl. Phys. B, **101**, No. 1 (2010) 65-70.
- 6) "Optical-vortex laser ablation", J. Hamazaki, R. Morita, K. Chujo, Y. Kobayashi, S. Tanda, T. Omatsu, Opt. Express **18** No. 3 (2010) 2144-2151.
- 7) "Optical phase conjugation of picosecond pulses at 1.06μm in Sn₂P₂S₆:Te for real-time wavefront correction in high-power Nd-doped amplifier systems", T. Bach, K. Nawata, M. Jazbinsek, T. Omatsu, P. Gunter, Opt. Express **18**, No. 1., (2010) 87-95.
- 8) "Highly Efficient Long-Lifetime Dual-Layered Waveguide Dye Laser Containing SiO₂ Nanoparticle-Dispersed Random Scattering Active Media," H. Watanabe, Y. Oki, T. Omatsu, Jpn. J. Appl. Phys. **48** (2009) 112503-1~3.
- 9) "Sub-100 W picosecond output from a phase-conjugate Nd:YVO₄ bounce amplifier", K. Nawata, M. Okida, K. Furuki, K. Miyamoto, T. Omatsu, Opt. Express **17** No.23 (2009) 20816-20823.

[学会発表] (計 13 件)

- 1) "高出力光渦レーザーの開発とその波長変換," 尾松孝茂, 2012年 春季 第59回 応用物理学関係連合講演会 (早稲田大学, 2012.3.16.)
- 2) "光波の全角運動量を用いたナノプロセッシング," 尾松孝茂, 森田隆二, レーザー学会学術講演会第32回年次大会(仙台, 2012.1.30)
- 3) "光波の角運動量を用いた金属ナノニードル加工," 尾松孝茂, 平成 23 年度第 1 回「微細加工と表面機能」専門委員会 (千葉大, 2011.7.28.)
- 4) "光渦レーザーによるナノプロセッシング," 尾松孝茂, 第 75 回レーザー加工学会 (関西大学, 2011.5.12.)
- 5) "光波の全角運動量マニピュレーションによる物質の構造制御", 尾松孝茂, フォトニクス技術フォーラム-次世代光学素

- 子研究会、(大阪科学技術センター、2011.3.2.)
- 6) "位相・偏光特異性をもつ極限光パルスの発生とその応用"、森田隆二、尾松孝茂、レーザー学会第31回年次大会(電通大、2011.1.10)
 - 7) "高出力光渦ファイバーレーザーとその応用"、尾松孝茂、レーザー学会第31回年次大会(電通大、2011.1.9)
 - 8) "レーザー光の角運動量制御"、尾松孝茂、第34回レーザー協会セミナー、2010年11月18日中央大学駿河台記念館610号室
 - 9) "High power vanadate bounce lasers", T. Omatsu, International photonics and opto-electronics meeting (POEM2010), (Wuhan, China, 2010.11.3-5).
 - 10) "Laser ablation by optical vortex beams," T. Omatsu, International Congress on Applications of Lasers and Electro-Optics (ICALEO2010), (Anaheim, 2010.9.27-10.1)
 - 11) "高出力光渦レーザーの開発とレーザーアプリケーションへの応用", 尾松孝茂, 日本物理学会秋季大会シンポジウム「光のドーナツビームと軌道角運動量」(2010.9.24)
 - 12) "高出力光渦レーザーの開発とレーザーアプリケーションへの応用", 尾松孝茂, 平成22年電気学会電子・情報・システム部門大会(電気学会熊本大会)企画シンポジウム「ビームマニピュレーションによるレーザープロセッシング」(熊本, 2010.9.2.)
 - 13) "100-Watt pico-second phase conjugate lasers," Takashige Omatsu, The 5th workshop of SBS and phase conjugation, (Chiba, 2010.8-25-26)

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称: 光渦レーザー装置
 発明者: 尾松孝茂、宮本克彦
 権利者: 千葉大学
 種類: 特許
 番号: 特願 2011-127356
 出願年月日: 2011.6.7.
 国内外の別: 国内

○取得状況 (計2件)

名称: 超短パルス光のための位相共役鏡とそれを用いた光増幅器
 発明者: 尾松孝茂
 権利者: 科学技術振興機構
 種類: 特許

番号: 特許 2010-4492922

取得年月日: 2010-4-16

国内外の別: 国内

名称: 位相共役鏡

発明者: 尾松孝茂

権利者: 千葉大学

種類: 特許

番号: 特許 2010-4649614

取得年月日: 2010-12-24

国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等

<http://physics.tp.chiba-u.jp/~omatsu/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾松 孝茂 (OMATSU TAKASHIGE)

千葉大学・大学院融合科学研究科・教授

研究者番号: 30241938

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: