

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：63903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390102

研究課題名(和文) 大口径広帯域擬似位相整合デバイスを用いた高出力超短パルス発生の研究

研究課題名(英文) Intense, short-pulse generation by large-aperture, broad bandwidth quasi-phase matching device

研究代表者

石月 秀貴 (ISHIZUKI, Hideki)

分子科学研究所・分子制御レーザー開発研究センター・助教

研究者番号：90390674

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：擬似位相整合波長変換素子は、構造の設計・選択により所望の波長変換が実現できる。本研究では特に、チャープ構造や積層構造を導入することで、従来とは異なるスペクトル領域での波長変換などを検討し、これを実験的に実現した。研究の途中においては、結晶の均一性に関する問題が生じたものの、これを回避することで新たな知見を得た。これらの結果得られた波長変換素子は、共同研究に特殊な素子を提供することで、その有用性を確認した。また、新たな非線形光学波長変化材料として水晶の利用を検討し、高強度励起条件下での波長変換を実現した。

研究成果の概要(英文)：Quasi-phase matching can realize various and arbitrary wavelength conversion by fabrication of artificial periodic structure in the nonlinear crystal. In this research, new scheme in the QPM was investigated and demonstrated by using chirped structure or periodic laminar structure. Collaborating works by using the newly developed QPM device were done. Also, crystal quartz was newly investigated for intense laser pumped wavelength conversion.

研究分野：非線形光学

キーワード：擬似位相整合 周期分極反転 ニオブ酸リチウム タンタル酸リチウム 波長変換 軸傾斜構造 超短パルス

## 1. 研究開始当初の背景

レーザーは、現代の基盤技術として民生・産業、学術分野など幅広い領域における必須の道具となっている。その一方で直接に発振可能なレーザー光波長選択肢はそれほど多くない。このため光波長変換はレーザーの重要な要素技術と言える。従来から用いられている複屈折位相整合による光波長変換では、特性が媒質の屈折率分散に強く依存し、動作波長や利用可能非線形光学係数が限定されていた。これに対し擬似位相整合(QPM)に基づく波長変換では、媒質中への微細周期構造形成により、動作波長域の媒質透明域全体への拡大や、非線形光学係数の任意選択が可能であり、波長変換自由度を大きく拡大できることから、近年幅広い分野で利用されるようになってきている。

## 2. 研究の目的

本研究は、実用的な超大口径の擬似位相整合(QPM)波長変換デバイスの実現と、その超短パルス発生への適用を目的とする。具体的には、超短パルス発生での利用に適した、大口径かつ高効率・広帯域波長変換実現のため、積層式軸傾斜構造 QPM デバイスを新たに提案し、その評価を行う。波長変換素子用材料としてマグネシウム添加ニオブ酸リチウム(MgLN)等の強誘電体を用い、QPM デバイス開口面に対し結晶軸を傾斜させた「軸傾斜構造 QPM デバイス」をさらに積層化した「積層式軸傾斜構造 QPM デバイス」により、従来不可能であった大出力取扱可能で高効率かつ人為的に設計可能な広帯域波長特性を有する波長変換デバイスを実現する。赤外域光パラメトリック発振(または発生)実験によりその有効性を確認しつつ、超短パルス発生への適用を図る。

## 3. 研究の方法

本研究の期間は3年であり、前半では傾斜型周期構造形成のための材料検討および条件探索、後半では大口径 QPM 素子の作製および評価を、それぞれ実施した。

初年度である平成25年度は、構造形成および材料結晶の特性評価を実施した。

従来より、結晶Z軸を基板に対して傾斜させた結晶材料への周期分極反転構造形成の知見はあったものの、厚板の利用およびチャープ構造も兼ね備えた構造を実現可能か否かは未確認であった。このためまず5mm厚未傾斜基板を用い、中心周期約30ミクロンで周期チャープ量が±10%のチャープ構造形成を試み、良好な結果を得られた。

この結果から引き続き、チャープ構造を備

えた軸傾斜構造形成を試みる直前に、従来より用いてきた Mg 添加ニオブ酸リチウム(MgLN)結晶の均一性に問題があることが新たに明らかとなった。このため当初の研究計画を一部変更して、この問題の確認および対処法の検討を行った。この結果、結晶育成軸を従来と変更することで問題点を回避するという方針を確認した。

これらの基礎検討と並行して、従来よりの大口径 QPM デバイスを幾つかの共同研究グループに提供し特性評価を行った。

研究2年目である平成26年度は、前年度の結果を受けて、結晶均一性問題を回避する形での大口径 QPM デバイスの作成条件検討、テラヘルツ検出素子への適用を目指した傾斜構造 QPM 素子の検討を行った。

MgLN 結晶の単結晶育成時に生じる結晶縞が、QPM デバイスとして利用時にレーザー光品質を劣化させることを確認し、この問題解決のため従来利用してきた結晶とは結晶育成方位を90°回転した結晶を利用することとし、この場合の QPM 形成条件の検討を行った。この結果、本研究の目的であった大口径 QPM デバイス実現への障害を解決した。

QPM デバイス大口径化検討として従来サイズよりさらに口径拡大を試み、最大12mm厚結晶への周期分極反転構造形成を実現した。このサイズの素子を利用により、最大1J程度のパルス光を取り扱い可能となった。

これら大口径化した QPM デバイスを幾つかの共同研究グループに提供し、超短パルス応用やテラヘルツ波検出などに適用した。

研究最終年度である平成27年度は、それまでの研究成果をもとに、チャープ構造を有する QPM デバイスを用いた広帯域中赤外光発生や超短パルス光発生への適用を行うとともに、新たな非線形光学結晶として積層構造化した水晶を持ちいた QPM デバイスを検討した。

チャープ構造を有する大口径 QPM 素子を作成し、サブナノ秒光源による高強度励起シングルパス波長変換を行い、波長2ミクロン帯域での広帯域高発生や高効率中赤外光発生を実現した。

大口径 QPM 素子や傾斜構造 QPM 素子を用いた共同研究を行い、中赤外高出力超短パルス光発生や波長可変中赤外光発生などを実現した。

従来の MgLN などの強誘電体結晶や、LBO などのホウ素系結晶に代わる新たな非線形光学結晶として、水晶(石英)の利用を検討した。従来結晶に比してレーザー光耐久性に優れる水晶は、サブナノ秒以下の短パルス・高強度光による波長変換に適した材料であり、積層化による基礎検討を行い、その将来可能性を確認した。

#### 4. 研究成果

3年間の本研究により種々の検討を行い有用な成果を得た。以下にその成果を示す。

(1) QPM素子大口径化に伴い、従来用いられてきた結晶Z軸方向に結晶CZ育成を行った場合、育成に伴う結晶縞がビーム伝搬面に垂直となり、これがレーザー光品質を劣化させることが明らかとなった。この問題を解決するため、従来と異なりX軸育成結晶を利用することを提案した。

この場合、分極反転構造形成に対高電圧印加特性が若干劣化するという問題が生じたが、電圧印加条件を再検討することで解決した。

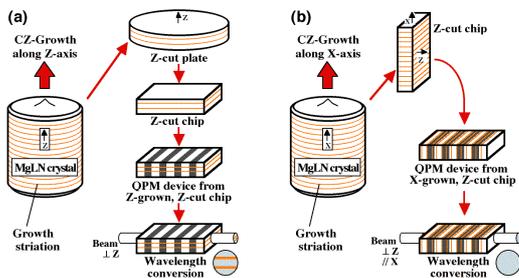


図1 X軸育成結晶でのPPMgLN素子

光パラメトリック発振による中赤外光発生により、従来のZ軸育成結晶と、提案したX軸育成結晶での比較を行った結果、特性に差異は無いことを確認し、新方式で作製した素子で置き換え可能であることを確認した。

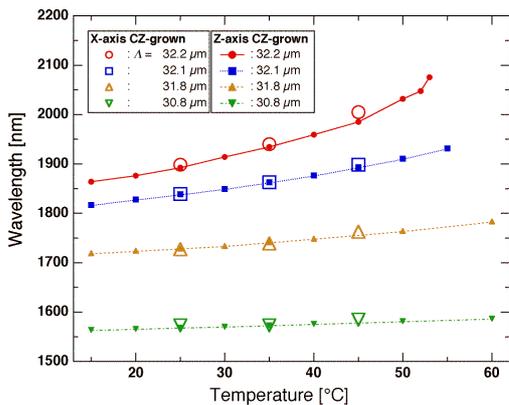


図2 Z軸育成とX軸育成でのOPO特性

(2) 上記の結晶軸方向変更を踏まえ、従来は最大10mm厚で世界最大であった大口径QPM素子の、さらなる口径拡大を検討した。この結果、従来より20%厚さを増加させた12mm厚まで拡大することに成功した。多くの光学実験においては、円形のビームを利用するため、利用可能ビーム径(およびレーザーエネルギー)で考えると、従来比1.44倍のレーザー光が取り扱い可能となった。

我々がよく利用する10nsパルス幅Nd:YAGレーザーでは、パルスエネルギー1Jが取り扱い可能となった。

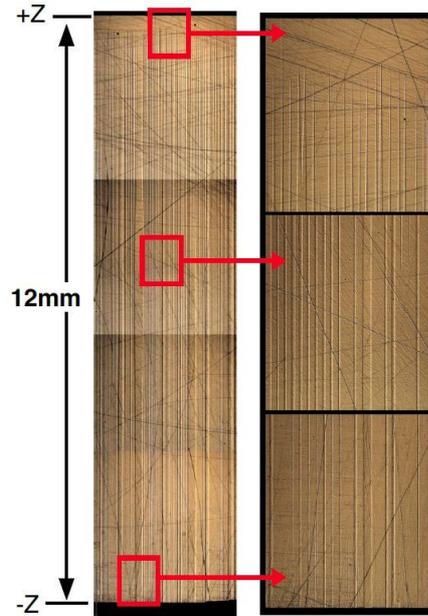


図3 12mm厚PPMgLN素子の断面構造

(3) チャープ構造を有するPPMgLN素子は、従来の単一周期素子と比較して、広帯域スペクトルを取り扱うことが可能である。このチャープ構造PPMgLN素子と、高強度サブナノ秒パルス光源との組み合わせにより、シングルパス構成での高効率光パラメトリック発生(OPG)を実現した。

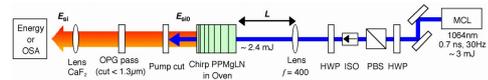


図4 OPG実験構成

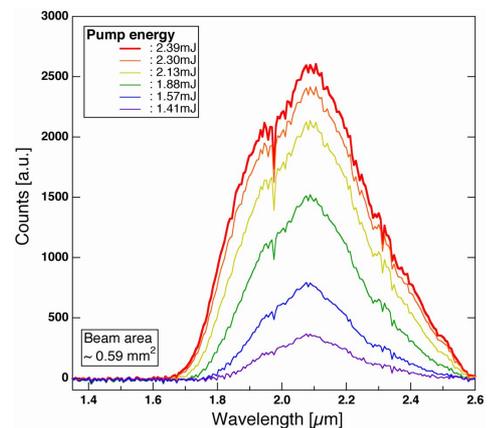


図5 チャープPPMgLNからのOPG出力

(4) 非線形光学波長変換材料として、特に高強度励起用途への適用を目的として、新たに水晶の利用を検討した。水晶は波長

0.15~2.8 ミクロン域で透明な正の1軸性結晶であり、従来より広く使われているMgLNやLBOに比較して高い耐久性を持つ。薄板水晶板の12枚積層構造によるQPM構造を構築し、サブナノ秒域パルス光によるQPM波長変換を実現した。

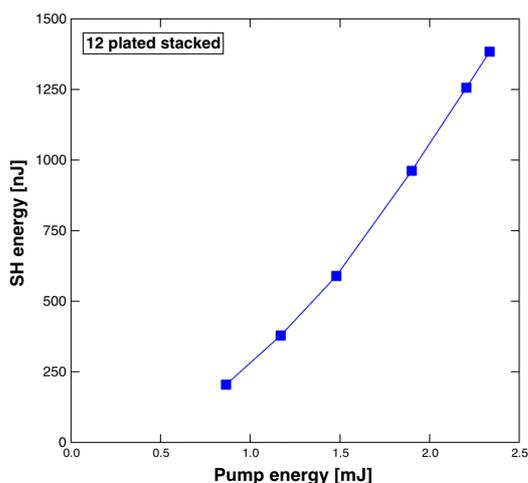


図6 水晶板積層QPMによるSH出力

#### 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 5件)

H. Ishizuki and T. Taira, "High-gain mid-infrared optical parametric generation pumped by microchip laser," *Opt. Express*, vol. 24, pp. 1046-1052 (2016). 査読有、DOI: 10.1364/OE.24.001046

S. Chaitanya Kumar, Junxiong Wei, J. Debray, Vincent Kemlin, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, and M. Ebrahim-Zadeh, "High-power, widely tunable, room-temperature picosecond optical parametric oscillator based on cylindrical 5%MgO:PPLN," *Opt. Lett.*, vol. 40, pp.3897-3900 (2015). 査読有、DOI: 10.1364/OL.40.003897

M. Baudisch, H. Pires, H. Ishizuki, T. Taira, M. Hemmer, and J. Biegert, "Sub-4-optical-cycle, 340-MW peak power, high stability mid-IR source at 160 kHz," *J. Optics*, vol. 17, 094002 (2015). 査読有、DOI: 10.1088/2040-8978/17/9/094002

H. Ishizuki and T. Taira, "Improvement of laser-beam distortion in large-aperture PPMgLN device by using X-axis Czochralski-grown crystal," *Opt.*

*Express*, vol. 22, pp. 19668-19673 (2014). 査読有、DOI: 10.1364/OE.22.019668

K. Nawata, T. Notake, H. Ishizuki, F. Qi, Y. Takida, S. Fan, S. Hayashi, T. Taira, and H. Minamide "Effective terahertz-to-near-infrared photon conversion in slant-stripe-type periodically poled LiNbO<sub>3</sub>," *App. Phys. Lett.*, vol. 104, 091125 (2014). 査読有、DOI: 10.1063/1.4868096

[学会発表](計 12件)

石月秀貴, 平等拓範, "水晶を用いた高強度光励起波長変換の検討," 平成28年第63回春季応物講演会, 21a-S611-4, 東京工業大学大岡山キャンパス, 東京都目黒区 (Mar. 19-22, 2016).

H. Ishizuki, and T. Taira, "Mid-Infrared Optical-Parametric Generation Pumped by Sub-Nanosecond Microchip Laser," *Advanced Solid-State Lasers 2015 (ASSL2015)*, AM3A.4, Adlershof-Berlin, Germany (Oct.4-9, 2015).

K. Nawata, T. Notake, H. Ishizuki, Y. Takida, Y. Tokizane, S. Hayashi, T. Taira, H. Minamide "Effective Photon Conversion from THz to NIR in a Slant-stripe-type Periodically Poled LiNbO<sub>3</sub>," "The 4<sup>th</sup> Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2015)", ALPSp14-54, Yokohama, Kanagawa, Japan (Apr. 22-24, 2015).

K. Nawata, T. Notake, H. Ishizuki, Y. Tokizane, Y. Takida, S. Hayashi, T. Taira and H. Minamide "Efficient wavelength-conversion from terahertz to near infrared using a slant-stripe-type periodically poled LiNbO<sub>3</sub>," "Optical Terahertz Science and Technology (OTST) 2015, Poster Session 1, Poster No. 5, San Diego, California, USA (Mar.8-13, 2015) .

K. Nawata, T. Notake, H. Ishizuki, F. Qi, Y. Takida, S. Fan, S. Hayashi, T. Taira, H. Minamide "Sensitive THz-wave detector using a quasi-phase-matched LiNbO<sub>3</sub> at room temperature," *Photonics Europe 2014*, 9136-40, Brussels, Belgium (Apr. 14-17, 2014).

H. Ishizuki, and T. Taira,

"Fabrication of large-aperture PPMgLN device using X-axis Czochralski-grown crystal," Conf. on Lasers and Electro-Optics (CLEO2014), STU11.5, San Jose, California, USA (June 8-13, 2014).

H. Ishizuki, and T. Taira, "1J pumped optical parametric oscillation by using large-aperture PPMgLN device," Advanced Solid-State Lasers 2014 (ASSL2014), ATu4A.3, Shanghai, China (Nov.16-21, 2014).

A. Thai, M. Baudisch, M. Hemmer, H. Ishizuki, T. Taira, and J. Biegert, "250 MW Peak Power Ultrafast mid-IR OPCPA," European Conference on Lasers and Electro Optics - International Quantum Electronics Conference 2013 (CLEO/Europe-IQEC 2013), CF/IE-9.6, Munich, Germany (May 12-16, 2013).

V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, and Gabriel Mennerat, "Widely and independently tunable cylindrical OPOs for difference frequency generation experiments," Nonlinear Optics 2013 (NLO2013), NTu2B.1, Kohala Coast, Hawaii, USA (July 21-26, 2013).

H. Ishizuki, and T. Taira, "Characterization of 8 mol% Mg-doped congruent LiTaO<sub>3</sub> for high-energy quasi-phase matching device," Advanced Solid-State Lasers 2013 (ASSL2013), AM4A.15, Paris, France (Oct.27-Nov.01, 2013).

V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, and Gabriel Mennerat, "All-parametric dual-wavelength source for difference frequency generation experiments," Advanced Solid-State Lasers 2013 (ASSL2013), MW3B.10, Paris, France (Oct.27-Nov.01, 2013).

M. Baudisch, A. Thai, M. Hemmer, H. Ishizuki, T. Taira, and J. Biegert, "5-cycle, 160-kHz, 20- $\mu$ J mid-IR OPCPA," Advanced Solid-State Lasers 2013 (ASSL2013), AF1A.7, Paris, France (Oct.27-Nov.01, 2013).

## 6. 研究組織 (1)研究代表者

石月 秀貴 (ISHIZUKI, Hideki)  
分子科学研究所・分子制御レーザー開発研  
究センター・助教  
研究者番号：90390674