

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 30 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03575

研究課題名(和文)モード同期光学フォノンを用いた超広帯域光発生の研究

研究課題名(英文)Ultrabroadband light generation by mode-locked optical phonons

研究代表者

西岡 一 (Nishioka, Hajime)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・教授

研究者番号：70180586

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：筆者は、2つの光子のエネルギー・運動量の差分を、2つの光学フォノンのエネルギー・運動量の差分に整合させ、時刻・波面を同期させたフォノン対の生成を行う方法を提案した。差動結合であるため、個々のモードに共通する擾乱を抑制でき、熱振動や波面ひずみ、個々のモードからの誘導散乱の抑制が期待できる。

CVD単結晶ダイヤモンドに僅かに離調した2つの励起光を照射し、離調を変化させるとブリュアンゾーン境界におけるフォノンの差周波数と一致した場合にのみ超広帯域光が発生した。一方、個別のフォノンモードから生成されるストークス光、反ストークス光は著しく抑制されている。

研究成果の概要(英文)：The differential two-phonon excitation that synchronize optical phonon modes has been proposed. Difference of energy and momentum between two-external photons conserve as these between two phonons under the differential excitation. Both temporal and spatial phase difference between the two phonon modes are fixed so that common modulation to two phonon modes (for example, common thermal noise, wavefront distortion, or single phonon stimulated scattering) can be suppressed.

A CVD single-crystal diamond is pumped by the two color pulses. An ultrabroad-band radiation have been observed when the frequency difference correspond to that between two phonon mode at the BZ boundary. In contrast, Stokes emission by single phonon stimulated Raman scattering are significantly suppressed.

研究分野：量子エレクトロニクス、非線形光学

キーワード：非線形光学 光学フォノン 誘導ラマン散乱 超短パルスレーザー

1. 研究開始当初の背景

外部電場により励起される光学フォノンの生成過程として、単一のフォノンが励起されるシングルフォノン過程と、同時に複数のフォノンが励起されるマルチフォノン過程がある。これまで報告されたマルチフォノン過程は図1(a)に示すように個々のフォノンのエネルギー和を外部電場により励起していた。この場合、2つのフォノンの和周波数が固定されるため個々のフォノンモードの位相には自由度があり、モード間の相互位相を固定する事はできない。

筆者が考案した差周波2フォノン励起[1]は、図1(b)のように2つのフォノンのエネルギー差を固定して励起しようとする方法である。2つのフォノンはそれぞれ外部電場により励起されるが、2フォノン過程を経るためその生成・消失は同期して差分干渉が得られる。

このとき2つの外部励起光が相互にコヒーレントであるならば、生成される2フォノンモードもコヒーレントに結合しフォノンモードは同期される。このとき、2つのフォノンに対する変調や擾乱は差分となって光に現れるので、媒質による擾乱を無くす事ができる。同時に、図2に示すように2つの励起光子の運動量の差分が2つのフォノンの運動量の差分となるので空間的にもコヒーレントなフォノンモードが生成される。

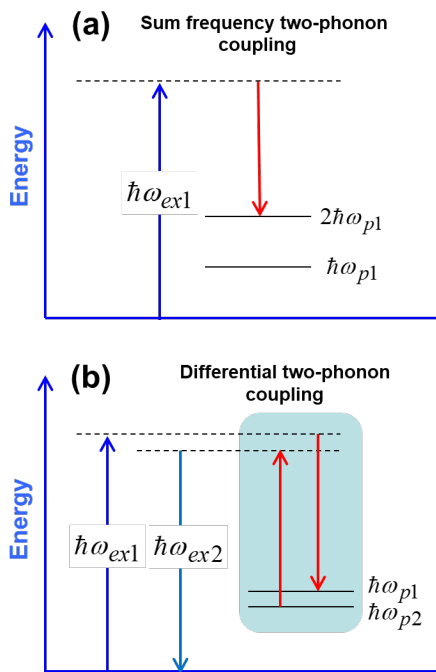


図1 誘導ラマン散乱を介した(a)和周波2フォノン励起と(b)差周波2フォノン励起の違い。青は励起光、赤はストークス光を示す。 $\hbar\omega_{ex}$ は外部電場エネルギー、 $\hbar\omega_p$ はフォノンエネルギーを示す。

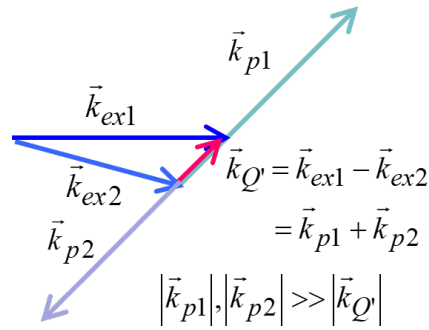


図2 励起光の光子と生成されるフォノンの運動量の保存。 k_{ex} : 励起光の運動量, k_p : フォノンの運動量。

2. 研究の目的

本研究は、差動2フォノン過程を用いてフォノンモード間の位相同期を行う。フォノンによる誘導散乱を用いて位相同期したスペクトル列を持つ広帯域光を発生しようとするものである。

3. 研究の方法

本研究では、狭帯域2波長レーザーを励起光として2つのフォノン準位を同期させ、高い相互コヒーレンスを持ったフォノンモードの同期を実現する。同期したフォノン対は超高周波・高安定の光変調器として動作する。この変調器は、位相同期された高次のサイドバンド光を生成する。

これまで用いられているモード同期レーザーを用いた光コム周波数間隔は光共振器の大きさにより制限され、100 MHz から高くとも数 GHz であるが、このフォノンモード同期を用いれは光学的に不可能であった THz 間隔の高周波光コムを実現できる。

本実験を行う上で最も重要な事は、空間的にも時間的にも高い相互コヒーレンスを持った2つの励起光を用意する事である。実際には、2つの単一縦モードVCSELを単一横モード半導体レーザー増幅器に注入して単一横モード2波長レーザーを構築した。VCELを用いると外部共振器無しに単一縦モードが得られ、モードジャンプ無しに連続波長可変が可能である。実験装置として、ナノ秒再生増幅器共振器内に誘導ラマン散乱媒質を配置して同軸2波長光で励起するシステムを新たに構築した。

一般に固体材料中のフォノンはエネルギー構造が複雑で、特定のフォノンモードを選択励起する事が困難である。特にダイヤモンドは光学フォノンのエネルギー構造が単純であり、ブリュアンゾーン中心で一つ、境界においても2つに限定されるため選択励起に適している。実験では、厚さ2 mm、長さ6 mmのCVD成長単結晶ダイヤモンドを2つ用

い、ブリュスター角で挿入した。励起光の伝搬方向は(100)面に平行である。光スイッチによりQスイッチ動作をおこない差動2フォノン励起を行った

4. 研究成果

図3は開発した同軸2波長半導体レーザーシステムの出カスペクトルである。個々のスペクトル線幅は100 MHzでコヒーレンス時間に換算して10 nsである。温度制御によりスペクトル間隔をダイヤモンドのブリュアンゾーン境界における光学フォノンの差周波数に相当する 170 cm^{-1} に選択した。この狭帯域光をポッケルスセルによってラマン媒質を挿入した再生増幅器内に注入した。得られた励起光と長波長側の散乱光時間波形を図4に示す。共振器を往復する励起光に合わせて散乱光が観測された。図5に示すように60THzの帯域でスペクトルが観測されたが、強いスペクトル範囲は30 THzであり共振器の反射帯域に制限されていた。このとき、シングルフォノン励起に相当する $1,333\text{ cm}^{-1}$ のストークス光は観測されていない。

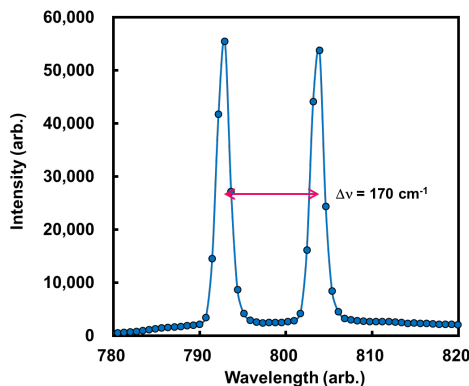


図3 同軸2波長レーザーの波長選択。分光器の分解能に制限されているが、個々の実線幅は100 MHzである。

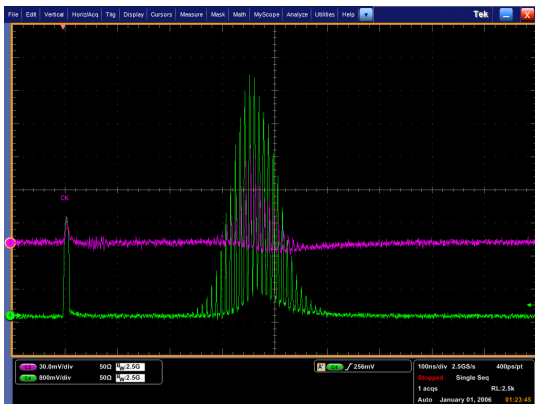


図4 再生増幅器内の光パルス列(緑)、および散乱光波形(赤)。100 ns/div.

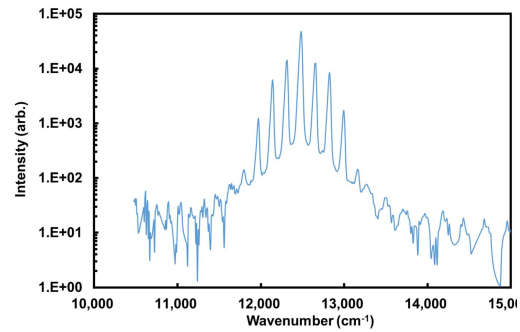


図5 2フォノンサイドバンドスペクトル。

ダイヤモンド中の光学フォノンの横緩和時間は5 psである。一方、ナノ秒励起では光学損傷のしきい値(約 100 MW/cm^2)におけるシングルパス利得は10倍程度であるため、共振器なしで散乱光を得る事は難しい。CVDダイヤモンドは熱的、機械的には卓越した性能を持つ。また、光学的には屈折率が高い特徴がある。しかし、高屈折率であるが故に非線形屈折率も高く、高強度レーザー光は容易に自己集束を起こす。自己集束を生じると光強度が増加するため周波数帯域は増加するが同時に光学損傷を生る。ナノ秒励起では、パルスエネルギーが大きいため損傷は重大で図6に示すように結晶内部まで炭化する。CVD結晶成長方向は、図6において上方向で、成長速度は $1\mu\text{m/hour}$ である。実験に用いた厚さ2 mmの結晶の育成には、2,000時間を要する。成長・研磨の歩留まりから入手可能な機会は年に一度程度であり、光学損傷が比較的起こり易いナノ秒光強度の実験では、光学損傷は大きな問題である。

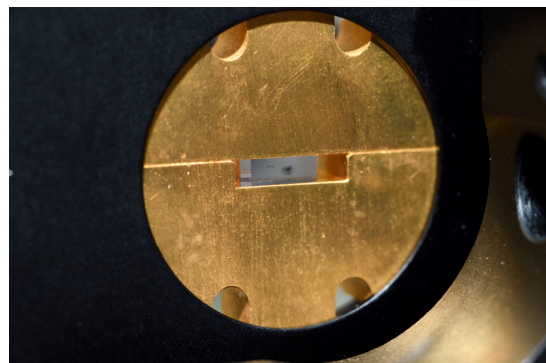


図6 CVD単結晶ダイヤモンド中の自己集束によるレーザー損傷。結晶断面は $2\times 6\text{ mm}$ 。

光学損傷を避けて効率的にフォノンを励起するためには、

1. 横緩和時間に近いピコ秒の励起パルスを用いる。
2. 短共振器を用いて、励起時間中の相互作用回数を増す。

などの方法が有効である。前者のために、ピコ秒領域の高繰り返し狭帯域レーザーの開発を行った。後者を実現するには、ダイヤモンド結晶そのものを多角形に研磨し、結晶内

部の全反射を共振器として用いる方法が原理的には最も有効である。全反射を用いる事で、高いQ値が実現でき、広い波長範囲で共振器を構成できるため、半導体レーザーによるCW励起でも散乱光を発生できる可能性がある。一方、上述のようにCVD成長方向がビーム断面となるため、大口径の素子を製作する事が困難である。薄い端面は研磨中にクラックが生じ易く、特にプリユスター形状など鋭角の加工は非常に困難であった。また、狭い面積であるため高い面精度や端面間の平行度を得られていない。こうした光学特性は、1パス励起の実験では問題にならないが、共振器構造を取る場合には重要な課題である。他の光学材料で製作したプリズムとの光学接着等、材料開発を含めて実験的に検討する。

<引用文献>

Hajime Nishioka, "Stokes suppression and supercontinuum generation by differential two-phonon excitation," *Optics Express* **22**, 26457-26461, 2014, DOI:10.1364/OE.22.026457.

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2件)

Sung In Hwang, Shigeki Tokita, Toshiyuki Kawashima, Hajime Nishioka, and Junji Kawanaka, "Hundred-picosecond narrowband chirped-pulse generation in an Yb:YAG regenerative amplifier using transmission gratings," *Japanese Journal of Applied Physics*, **55**, 122702-1-5, 2016 (査読有) DOI: 10.7567/JJAP.55122702.

Xiaoyang Guo, Shigeki Tokita, Kento Yoshii, Hajime Nishioka, and Junji Kawanaka, "Generation of 300 nm bandwidth 0.5 mJ pulses near 1 μm in a single stage gas filled hollow core fiber," *Optics Express* **25**, 1171-21179, 2017 (査読有) DOI: 10.1364/OE.25.021171.

[学会発表](計3件)

Shigeki Tokita, SungIn Hwang, Toshiyuki Kawashima, Hajime Nishioka, and Junji Kawanaka, "Pulse stretching in a narrow-band Yb:YAG regenerative amplifier using transmission gratings," *Proceedings of 2015 11th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR)* DOI:10.1109/CLEOPR.2015.7376128.

Shigeki Tokita, Martin Divoky, SungIn Hwang, Koichi Iyama, Toshiyuki Kawashima, Hajime Nishioka, and Junji

Kawanaka, "Development of 1 J, 100 Hz Yb:YAG laser amplifier system for OPCPA pumping," *Proceedings of 2015 11th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR)* DOI:10.1109/CLEOPR.2015.7376127.

K. Yoshii, S. Tokita, X. Guo, K. Iyama, M. Yoshida, T. Kawashima, H. Nishioka, J. Kawanaka, "Development of ultra-broadband frontend light source for OPCPA using partially-deuterated KDP crystals," *The 10th Asia-Pacific Laser Symposium (APLS 2016)* at Jeju, Korea on 10-14 May 2016.

6. 研究組織

(1)研究代表者

西岡 一 (NISHIOKA, Hajime)
電気通信大学・大学院情報理工学研究所・教授

研究者番号：70180586

(2)研究分担者

河仲 準二 (KAWANAKA, Junji)
大阪大学・レーザー科学研究所・准教授
研究者番号：50264362