

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月6日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K04971

研究課題名(和文) 時間分解熱レンズ計測による有機非線形光学結晶の非破壊レーザー耐性評価

研究課題名(英文) Thermal lens effects in an organic nonlinear crystal pumped by 1.5 um laser

研究代表者

宮本 克彦 (MIYAMOTO, Katsuhiko)

千葉大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：20375158

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、無機非線形光学結晶の性能をはるかに凌駕する可能性を秘めたテラヘルツ発生用有機非線形光学結晶のレーザー損傷メカニズムを解明する、熱レンズ計測法を開発した。有機非線形光学結晶は一般に無機結晶に比べレーザー耐性が低く、高出力化が壁となっていた。本手法では、テラヘルツ光発生時に励起光によって誘起される局所的な屈折率変化をプローブ光の焦点距離から定量的に測定を行った。さらに、結晶中の局所的な屈折率変化に偏光依存性が示されたことは大きな知見である。本手法は、具体的な破壊要因を特定できない既存の破壊検査とは一線を画し、非破壊・非接触で結晶品質を客観的に評価することが可能である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

有機非線形光学結晶は分子間の水素結合からなるため、結晶欠陥・歪みなどが入りやすくレーザー照射耐性が無機結晶に比べ低い。このため、潜在的に有する高い非線形性を十分に発揮できていないのが現状である。プローブ光を用いて結晶内の局所的な屈折率変化を非破壊・非接触で直接観測できる本手法では、屈折率変化の面内分布だけでなく、偏光依存性および時間分解が可能である。熱レンズ効果測定を用いることで、結晶品質を客観的に評価し結晶育成技術の改善にフィードバックすることが期待できる。

研究成果の概要(英文)：We investigated the local refractive index change i.e., thermal lens effect, in an organic crystal induced by the pump beam during terahertz (THz) wave generation by measuring the focal position change of the probe beam. The measurement system of the thermal lens effect is based on the tunable THz source under difference frequency generation. The change in the focal length of the probe beam incident on the crystal coaxially with the pump beam was measured with and without the pump beam as a function of the incident power. In the case of the DAST crystal, the thermal lens effect was observed only on the a-axis of the crystal regardless of the polarization direction of the pump beam. It is anticipated that results obtained from our measurement technique will enable the development of a non-destructive inspection of the laser damage threshold of an organic nonlinear crystal.

研究分野：応用光学

キーワード：テラヘルツ 有機非線形光学結晶 熱レンズ効果 屈折率

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ波発生用の非線形光学素子として有望である有機非線形光学結晶は、分子間の水素結合からなるため結晶欠陥・歪みが入りやすく、レーザー照射耐性が無機結晶に比べて低い。そのため、その潜在的に有する高い非線形性を十分に活用することが出来ず、テラヘルツ波発生の高出力化が課題となっている。具体的な破壊要因を特定できない既存の破壊検査では、結晶品質を客観的に評価して結晶育成技術の改善にフィードバックすることは難しい。本手法では、励起光と同軸に入射したプローブ光の焦点位置から局所的な屈折率変化を測定しており、非接触・非破壊に加えテラヘルツ波を発生しながら計測できる利点がある。

### 2. 研究の目的

テラヘルツ波発生時における、励起光吸収に伴う温度上昇と熱応力によって結晶内に誘起される二次関数的な屈折率変化すなわち局所的なレンズ効果を利用して、非線形光学結晶中のレーザー照射耐性について定量評価することを、本課題の目的とした。

### 3. 研究の方法

レーザー照射によって誘起される有機非線形光学結晶中の局所的な屈折率変化を、熱レンズ効果を介して測定する。本課題で用いた実験光学系の概略図を図 1(a)に示す。これは、有機非線形光学結晶を用いた周波数可変テラヘルツ光源をベースとしている。励起光である  $1.5\mu\text{m}$  帯の 2 波長光を結晶に集光し、その 2 つの周波数差がテラヘルツ波として発生する。この際、励起光の入射によって有機非線形光学結晶中には局所的な温度変化に伴う屈折率変化が生じている。この熱レンズ効果を測定するため、He-Ne レーザー(波長  $632.8\text{nm}$ )をプローブ光として励起光と同軸に測定対象の有機非線形光学結晶に入射する。結晶透過後のプローブ光をレンズにより集光し、結晶内で生じた励起光由来の屈折率変化を合成焦点距離の変化として自動計測する。本システムでのもう一つの特徴としては、実際にテラヘルツ波を発生させながら熱レンズ測定が可能なのが挙げられる。励起光、テラヘルツ波、プローブ光の偏光状態の関係は図 1(b)に示す通りである。発生したテラヘルツ波は放物面鏡を介して検出器へと導入される一方、プローブ光は穴あき放物面鏡を通過する。ここでは、励起光のビーム直径  $\sim 0.5\text{mm}(1/e^2)$  に対して、プローブ光をほぼ同等の  $\sim 0.5\text{mm}(1/e^2)$  に成形して測定を行った。試料として、DAST (4-N,N-dimethylamino-4'-N'-methylstilbazolium tosylate) 結晶、OH1 ((2-(3-(4-Hydroxystyryl)-5,5-dimethylcyclohex-2-enylidene)malononitrile)) 結晶の 2 種類を用いた。さらに、標準試料として ND フィルターによる測定も合わせて行った。

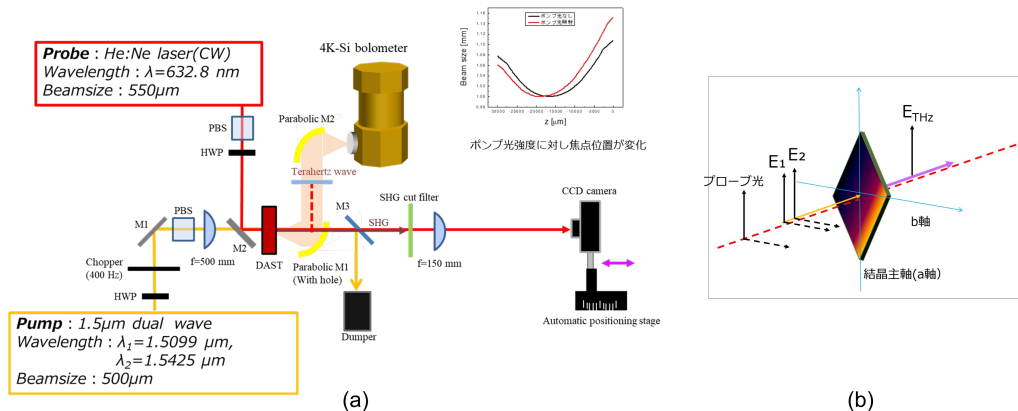


図 1(a) 有機非線形光学結晶における局所的な屈折率変化測定装置  
(b) DAST 結晶における励起光・テラヘルツ波・プローブ光の偏光状態

### 4. 研究成果

初めに、標準試料として用意した ND フィルターを用いて測定を行った。図 1(a)内に示す通り、励起光有り無しでプローブ光の焦点位置変化が確認できた。さらに、励起光の入力パワーに応じて  $1/f_{thermal}$  (熱レンズ効果後の焦点距離) が線形に変化したことから、励起光由来の局所的な屈折率変化を反映した熱レンズ効果を、合成焦点距離距離の変化量と対応させて測定可能なことが示された。次に、DAST および OH1 の 2 つの有機非線形光学結晶を用いてテラヘルツ波を発生させながら、熱レンズ効果測定を行った。この時、テラヘルツ波、励起光、プローブ光は全て同じ偏光状態である。励起光入射による結晶の温度変化については、サーモカメラによる観測を併用した。2 つの結晶ともに励起光入力に対して  $1/f_{thermal}$  が線形に変化していることがわかる(図 2)。しかし、励起パワーに対する  $1/f_{thermal}$  の変化量、すなわち傾きは OH1 結晶の方が約 2 倍程度大きい事が観測された。これは、サーモカメラによる温度変化測定の結果(DAST 結晶に比べ OH1 の方が温度変化が 2.8 倍程度大きい)と矛盾が無く、励起パワーに対する温度変化が局所的な屈折率変化として測定されたことを示すものである。破壊検査による耐レーザー損傷閾値の結果でも、OH1 結晶の方が DAST 結晶に比べて低いことが知られており、関連のある結果が熱レンズ測定においても観測できた。

次に DAST 結晶を用いて、熱レンズ効果における偏光依存性について測定を行った。図 3(a) は励起光の偏光を a 軸と平行とした場合(テラヘルツ波が発生)、これに対して(b)は励起光を a 軸と垂直(b 軸に平行としたためテラヘルツ波は発生しない)とした場合についての実験結果を示している。プローブ光の偏光についても、それぞれ a および b 軸に対して平行な状態で測定を行った。この場合、励起光の偏光方向(結晶主軸 a 軸と平行あるいは垂直)によらず、プローブ光が結晶主軸 a 軸と平行な場合にのみ、屈折率変化に伴う熱レンズ効果が測定出来た。プローブ光を a 軸と垂直とした場合には、熱レンズ効果は励起光の偏光方向に関係なく測定できなかった。並行して行ったサーモカメラによる温度変化測定では、図 3(a)および(b)どちらの場合においても、つまり励起光と結晶軸の向きに関係なく、約 11KW のスロープで励起パワーに対して温度変化が生じた。これらの偏光依存性の結果から、有機非線形光学結晶内での局所的な屈折率分布には、励起光入射による熱由来の屈折率変化だけでなく、誘電率の影響があることが示唆された。DAST 結晶 a 軸の熱膨張率が b および c 軸に比べて極めて小さくその結合が非常に大きいという報告とも相関が示された。非線形光学結晶内において局所的な屈折率変化に偏光依存性が示されたことは大きな知見であり、結晶の破壊要因の解明に本手法は向いている。

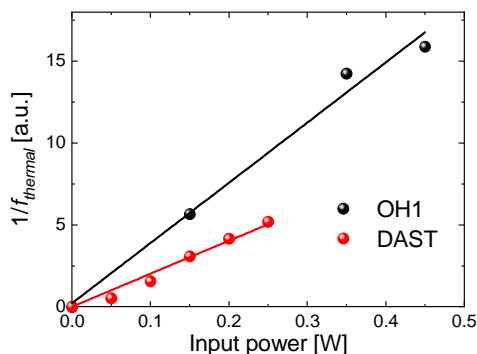
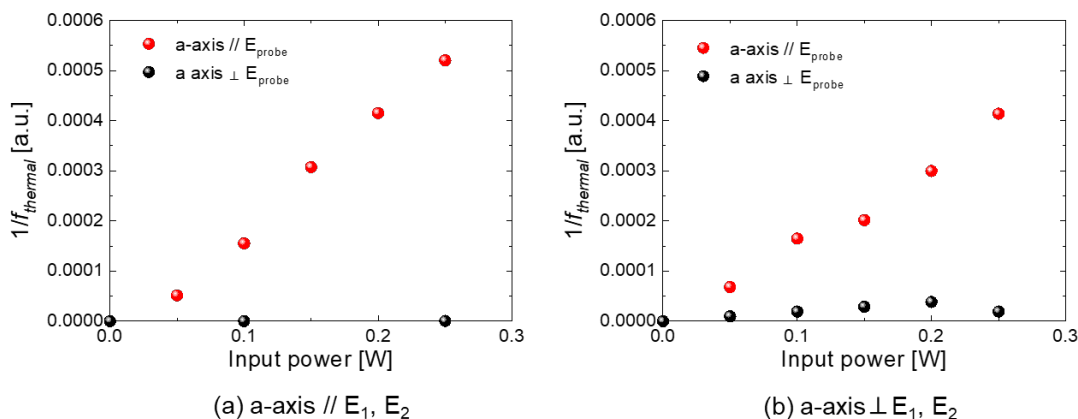


図 2 有機非線形光学結晶 DAST および OH1 における熱レンズ効果測定



(a) a-axis // E<sub>1</sub>, E<sub>2</sub>

(b) a-axis ⊥ E<sub>1</sub>, E<sub>2</sub>

図 3 有機非線形光学結晶 DAST における熱レンズ効果の偏光依存性

(a) 結晶 a 軸と励起光の偏光が平行、(b) 結晶 a 軸と励起光の偏光が垂直

今後の課題は、比熱・熱伝導率などの物性値と比較検討を行い、計測を行った屈折率変化の定量性を担保することである。本研究で提案した熱レンズ効果測定は、光損傷というイベントを測定している破壊検査とは一線を画し、テラヘルツ波発生時における結晶内での局所的な結晶歪や結晶欠陥を非接触・非破壊に直接観測することが十分に期待できる。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 9 件)

1. J.-C. Tung, Y. Ma, Y.-F. Chen, **K. Miyamoto**, and T. Omatsu, "Bottle beam generation from a frequency-doubled Nd:YVO<sub>4</sub> laser with a tightly end-pumping geometry," *Sci. Rep.*, 査読有, **8**, 16576 (2018). 10.1038/s41598-018-34783-z
2. R. Mamuti, S. Araki, S. Nishida, **K. Miyamoto**, and T. Omatsu, "Tunable near-infrared optical vortex parametric laser with versatile orbital angular momentum states," *Appl. Opt.*, 査読有, **57**(34), 10004–10008 (2018). 10.1364/AO.57.010004
3. T. Yusufu, S. Niu, P. Tuersun, Y. Tulake, **K. Miyamoto**, and T. Omatsu, "Tunable 3 μm optical vortex parametric oscillator," *Japanese J. Appl. Phys.*, 査読有, **57**, 122701 (2018). 10.7567/JJAP.57.122701
4. S. Araki, K. Ando, **K. Miyamoto**, and T. Omatsu, "Ultra-widely tunable mid-infrared (6–18 μm) optical vortex source," *Appl. Opt.*, 査読有, **57**(4), 620–624 (2018). 10.1364/AO.57.000620

5. T. Omatsu, **K. Miyamoto**, A. J. Lee, "Wavelength-versatile optical vortex lasers," J. Opt., 査読有, **19**(12), 123002/1-17, (2017). 10.1088/2040-8986/aa9445
6. Y. Sasaki, K. Yamaguchi, J. Shibakawa, **K. Miyamoto**, and T. Omatsu, "Ultraviolet optical vortex generation using a pair of  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> crystals with inverted orientations," Appl. Opt. **56**(29), 査読有, 8075–8080 (2017). 10.1364/AO.56.008075
7. S. Araki, K. Suzuki, S. Nishida, R. Mamuti, **K. Miyamoto**, and T. Omatsu, "Ultra-broadband tunable (0.67–2.57 $\mu$ m) optical vortex parametric oscillator," Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, **56**, 102701 (2017). 10.7567/JJAP.56.102701
8. J. Kim, S.-H. Lee, S.-C. Lee, M. Jazbinsek, **K. Miyamoto**, T. Omatsu, Y. S. Lee, and O.-P. Kwon, "Terahertz Phonon Modes of Highly Efficient Electro-optic Phenyltriene OH1 Crystals," J. Phys. Chem. C, 査読有, **120**(42), 24360–24369 (2016). 10.1021/acs.jpcc.6b07979
9. **K. Miyamoto**, B. J. Kang, W. T. Kim, Y. Sasaki, H. Niinomi, K. Suizu, F. Rotermund, and T. Omatsu, "Highly intense monocycle terahertz vortex generation by utilizing a Tsurupica spiral phase plate," Sci. Rep., 査読有, **6**, 38880 (2016). 10.1038/srep38880

〔学会発表〕(計 10 件)

1. **K. Miyamoto**, K. Sano, T. Yamaski, T. Miyakawa, T. Omatsu, "Widely tunable (2-6THz) terahertz vortex source," Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-PR) 2018 (2018.08.01)
  2. **K. Miyamoto**, T. Omatsu, "Optical vortex material processing," Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2018 (2018.06.25). (招待講演)
  3. **K. Miyamoto**, F. Rotermund, T. Omatsu, "Monocycle terahertz vortex generation," EMN meeting on Terahertz & Collaborative Conference on Nonlinear Optics (2018.04.17). (招待講演)
  4. **K. Miyamoto**, F. Rotermund, T. Omatsu, "Terahertz vortex generation by a Tsurupica vortex phase plate," The 10th Asian Symposium on Intense Laser Science (2018.03.10). (招待講演)
  5. **K. Miyamoto**, F. Rotermund, T. Omatsu, "Terahertz vortex generation and its applications," The 25th International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT'17) (2017.09.17). (招待講演)
  6. 宮本克彦、尾松孝茂、"テラヘルツ領域における光渦発生," 電子情報通信学会ソサイエティ大会 (2017.09.15). (招待講演)
  7. 宮本克彦、尾松孝茂、"テラヘルツ帯光渦の発生とその応用," レーザー学会学術講演会第37回年次大会 (2017.01.09). (招待講演)
  8. 宮本克彦、尾松孝茂、"テラヘルツ領域におけるトポロジカル光波への展開," シンポジウム テラヘルツ科学の最先端III (2016.11.25). (招待講演)
  9. **K. Miyamoto**, T. Omatsu, "Terahertz vortex generation by Using a Tsurupica Phase Plate," EMN meeting on Terahertz 2016 (2016.05.17). (招待講演)
  10. **K. Miyamoto**, T. Omatsu, "Widely tunable (1-15 THz) picosecond THz source and its applications," EMN meeting on Optoelectronics 2016 (2016.04.12). (招待講演)
- 招待講演 9 件、国際会議 1 件

〔図書〕(計 1 件)

1. T. Omatsu, **K. Miyamoto**, R. Morita, "Optical Vortices Illumination Enables the Creation of Chiral Nanostructures," Vortex Dynamics and Optical Vortices edited by Hector Perez-de-Tejada, ISBN 978-953-51-2930-1, Print ISBN 978-953-51-2929-5, Published: March1, 2017 under CC BY 3.0 license, DOI:10.5772/67073, InTech

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者 無し

(2)研究協力者 無し