

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25年 5月21日現在

機関番号：63903
 研究種目：基盤研究(C)
 研究期間：2010～2012
 課題番号：22560046
 研究課題名（和文）超短パルス発生への適用を目指した傾斜型擬似位相整合デバイスの研究
 研究課題名（英文）Axis-slant quasi-phase matching device for ultra-short pulse generation
 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

研究成果の概要（和文）：従来の擬似位相整合光波長変換素子では困難な超大口径化を実現する、傾斜型の分極反転構造を持つ素子を提案し、その作製および光パラメトリック波長変換による光学評価を行い、その有効性を確認した。併せて、世界で初めて10mm厚の擬似位相整合素子を実現し、これを用いたジュール級エネルギーの光パラメトリック発振を実現するなど、擬似位相整合素子の大口徑化を進めた。

研究成果の概要（英文）：Axis-slant-type quasi-phase matching (QPM) device was proposed for high energy wavelength conversion, which was impossible by using a conventional QPM device. Device characterization by optical-parametric wavelength conversion was demonstrated. Also, a 10-mm-thick QPM-MgLN device was realized, which realized a joule-class energy operation in ten-nano-seconds optical parametric oscillation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：非線形光学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用光学・量子光工学

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

1. 研究開始当初の背景

いわゆる「レーザー」は、現代の基盤技術として民生から産業まで広く利用されており、その用途は、通信、加工、計測、分析など多岐にわたる。その一方で、直接に発振可能なレーザーの波長選択肢はそれほど多くはない。このためレーザーは波長変換技術と組み合わせて用いられるこ

とが多い。波長変換結晶中への微細周期構造形成で実現される擬似位相整合(QPM)は、従来の複屈折位相整合に比較して波長変換の自由度や効率を劇的に改善するが、その構造形成には依然として種々の解決すべき問題が存在する。

Mg添加LiNbO₃(MgLN)に代表される強誘電体結晶は、高電界印加法による周期構造形成が可能であり、可視～近赤外域

での QPM 素子用材料として広く用いられている。導波路型素子から発展してきたこの QPM-MgLN 素子は、当初は素子厚 \sim 10 ミクロン程度の導波路構造であったため、高効率である一方で高エネルギーの取扱には不向きであった。これに対し我々は、厚板 MgLN 結晶への QPM 構造形成を実現することで、垂直構造で最大 5mm 厚の QPM-MgLN 素子を実現してきたものの、より高エネルギー超短パルスの取扱に適した更なる大口径 QPM 素子の実現には限界があると考えていた。

2. 研究の目的

従来の QPM 素子は、周期構造を基板面に対し垂直に形成する（垂直構造）ものであり、この場合の素子開口は基板厚で制限されてきた。これに対し、周期構造を基板面に対し傾斜して形成できれば、基板面そのものを素子開口として利用でき、開口サイズを極端に拡大できるほか、従来は困難であった素子利用法（素子の広角回転など）への展開が期待できる。

以上を踏まえ本研究では、傾斜型 QPM 構造を備えた大口径非線形光学素子の実現と、その超短パルス発生への適用を目的とした。

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22年度は、主に材料検討および条件探索を実施した。主材料として、従来の Mg 添加コングルメント組成ニオブ酸リチウム (MgLN) および、近年開発され、過去に実際に物性値評価等を行った Mg 添加コングルメント組成タンタル酸リチウムについて比較検討を行い、物性値および過去の利用実績から MgLN を選択した。構造作製にあたっては、波長 1064nm レーザー光励起の光パラメトリック発振に適した、結晶内部における実効反転周期 \sim 30 ミクロンを実現可能で、QPM 素子口径拡大に適した結晶傾斜角度として 65° を選択し、周期構造形成条件を探索した結果、結晶厚 2mm までは良好な周期構造を形成できる条件を見出した。

研究2年目である平成23年度は、主に実際の素子作製と基本的評価を実施し

た。素子作製では、前年の検討結果をもとに結晶厚 2mm の MgLN 結晶への傾斜角度 65° かつ結晶内部分極反転周期約 30 ミクロンの周期構造形成を検討し、この後の光学実験での利用に供しうる作製条件を得た。これを元に基本的光学評価を行うため、作製した傾斜型 QPM 素子の両入出力面を光学研磨し、波長 1064nm レーザー光（パルス幅 35 ピコ秒）励起の光第二高調波発生による素子面内評価を行った。その結果、作製した素子面内において、8mm \times 11mm 以上の有効開口が実現できていることを確認した。これは従来我々が実現していた 5mm 厚 QPM 素子を用いて作製できる素子開口サイズを大きく凌駕するものであり、傾斜型 QPM 構造による超大口径 QPM 素子実現の可能性を確信させるものと言える。

研究最終年度である平成24年度は、主として大口径 QPM-MgLN 素子による大出力光パラメトリック波長変換実験を行った。前年までの結果で得られた、厚板 MgLN への分極反転形成条件を元に、まず世界で初めて垂直構造の 10mm 厚 MgLN 結晶への反転周期 \sim 30 ミクロンの分極反転構造形成に成功した。この 10mm 厚 QPM-MgLN 素子を用い、波長 1064nm レーザー光（パルス幅 10 ナノ秒）励起の光パラメトリック発振実験を行い、励起 709mJ 時に全出力 540mJ という高出力・高効率波長変換を実現した。これにより、従来の 5mm 厚 QPM-MgLN 素子に比して 4 倍の入力および出力エネルギーが取扱可能となった。

これに加え、前年に引き続き行った傾斜型 QPM 素子（結晶厚 2mm、傾斜角 65° 、結晶内部分極反転周期約 30 ミクロン）の光パラメトリック波長変換評価では、現時点で利用できる励起光源（パルス幅 35 ピコ秒、波長 1064nm）では実験に不十分という結果が得られた。しかし共同研究を実施している国内外研究者との意見交換の結果、超短パルス発生等の超高強度励起光源利用を前提とする分野においては、本傾斜型 QPM 素子の大口徑特性が極めて有用であるという結論が得られた。今後、素子の積層化（＝長尺化）および共同研究による励起光源の変更などの対処・評価を継続する予定である。

以上、3年間の本研究において、傾斜型大口徑 QPM 素子作製の検討および種々の大口徑 QPM 素子の光学評価について検討を行った。内容詳細は、以下の研究成果に示す。

4. 研究成果

(1)従来の QPM-MgLN 素子構造 (垂直構造、図 1 (a)) では、励起光ビーム径は素子結晶厚で制限され、素子結晶厚自体は周期構造アスペクト比や分極反転プロセスに使用する電源装置等で制限されていた。しかし図 1 (b)に示すような傾斜構造とすれば、基板面そのものを素子開口として利用できる。この構造では、従来の垂直構造に比較して素子長 (=伝搬長) 短縮と引き替えに開口サイズを極端に拡大でき、超短パルス応用に適した広開口 (素子ダメージ抑制につながる) と広スペクトル帯域 (広帯域波長変換特性を得る) とが実現できる。

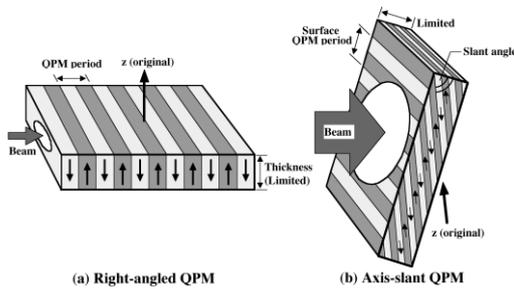


図 1 (a)垂直構造 QPM (b)傾斜構造 QPM

傾斜構造では、傾斜角増加に伴い MgLN の結晶 Z 軸方向長さが増大するため、分極反転に必要な電圧も増加する。実際に測定した反転抗電界を図 2 に示す (鋸歯状波電界印加、電界強度増加率 $S = 10\text{ kV/mm-s}$ 、温度 $T = 120^\circ\text{C}$)。傾斜角に応じた反転抗電界上昇と電界値を確認した。

これらの結果を踏まえ、実際に傾斜構造分極反転を行った結果を図 3 に示す。傾斜角=30、45、65°のそれぞれにおいて、実際に分極反転構造が形成できることを確認した。その一方で傾斜角の増加に伴い反転時の結晶表面損傷も顕著となる傾向にあることが判明した。

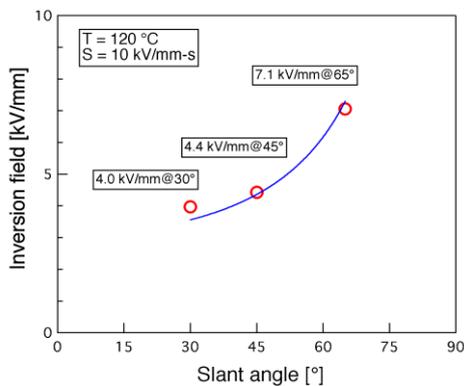


図 2 傾斜角と反転抗電界

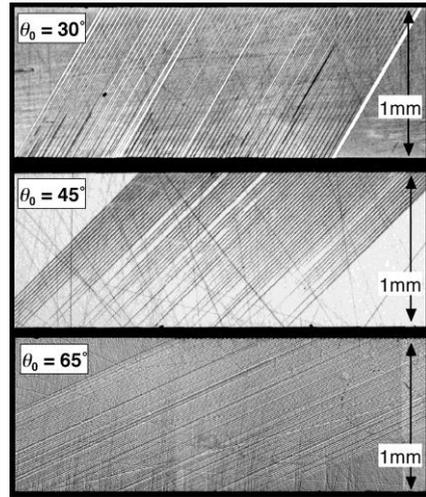


図 3 傾斜した分極反転構造断面写真 (全て表面反転周期~30 ミクロン)

(2)実際に作製した傾斜型 QPM-MgLN 素子 (傾斜角 65°、内部反転周期~30 ミクロン) について、図 4 に示すように Nd:YAG レーザー (波長 1064nm、パルス幅 35 ピコ秒、繰返 10Hz) からの高次第二高調波 (緑色光) 発生による開口面内効率分布評価を行った。その結果、素子開口面内において、8mm×11mm 以上の有効開口が実現できていることを確認した (図 5)。今回作製した素子の開口サイズは、試作した傾斜型分極反転装置の大きさに制限されたものであり、必要に応じてウェハーサイズまでの開口拡大も可能である。

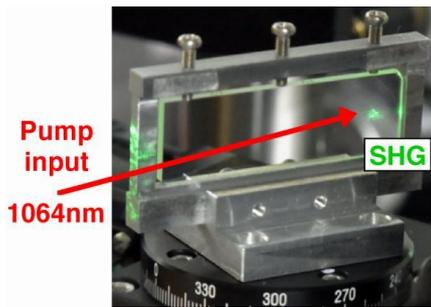


図 4 傾斜素子の面内分布評価実験

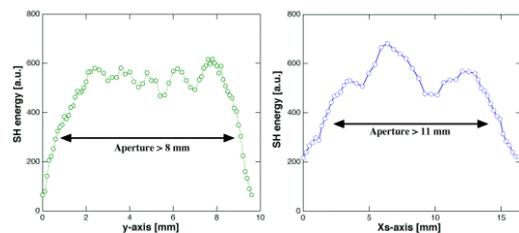


図 5 緑色光発生の開口面内分布

(3)傾斜型分極反転構造形成の条件探索は、厚板垂直構造素子作製の条件探索に類似した点がある。このことから、改めて垂直構造素子のさらなる大口径化を検討した結果、世界で初めて 10mm 厚の QPM-MgLN 素子 (周期 \sim 30 ミクロン) の作製に成功した (図 6)。この素子を用い、Q スイッチ Nd:YAG レーザー (波長 1064nm、パルス幅 10 ナノ秒、繰返 10Hz) 励起の光パラメトリック発振を行った結果、励起 709mJ 時に全出力 540mJ という高出力・高効率波長変換が可能となった (図 7)。これは従来の我々の 5mm 厚 QPM-MgLN 素子に比して 4 倍の入力および出力エネルギーに相当するものである。

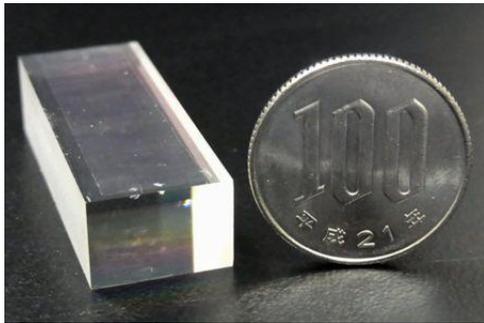


図 6 作製した 10mm 厚 QPM-MgLN 素子 (周期 \sim 30 ミクロン)

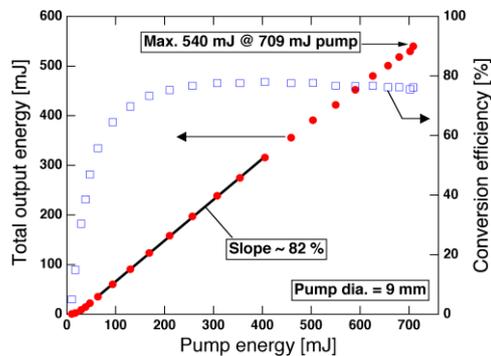


図 7 光パラメトリック発振の入出力特性

(4)一方でこの種の垂直構造素子の問題点も改めて評価・確認した。図 8 は出力シグナル光ビーム形状の励起光エネルギー依存性を観察した結果である。垂直構造素子で不可避の楔形分極構造に起因すると考えられる開口面内変換効率分布が観察された。このような効率ムラは、低強度励起時に顕著となる。しかし大口径 QPM-MgLN 素子実現の目的は、高強度・高エネルギーパルスを取り扱うことであるから、低強度時の問題は無視できると考えている。

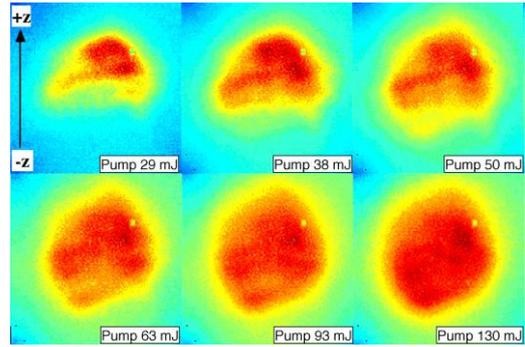


図 8 出力シグナル光ビーム形状の励起光強度依存性

(5)本研究および関連した研究に基づいて作製した大口径 QPM-MgLN 素子は、国内および海外の幾つかの研究グループとの共同研究に供されており、その結果は既に国際会議での講演や論文等の形で報告されている (雑誌論文 1-3、学会発表 4 など)。これらのグループとの検討・議論の結果、本研究で実現したような傾斜型 QPM-MgLN 素子の将来性を期待する意見が寄せられた。即ち、垂直構造素子では最大 10mm 厚のものが新たに実現できたが、この構造ではこれ以上の劇的な開口サイズ拡大は困難である。一方で傾斜型構造素子では、必要に応じて劇的な開口サイズ拡大が期待できることから、超短パルス発生等の超高強度励起光源利用を前提とする分野において極めて有用となる。

大口径傾斜型素子の光パラメトリック波長変換による直接評価には、高強度パルスレーザー光源が必要である。残念ながら申請者のグループ単独で行うことは不可能であるため、国内外のこの分野の研究者らとの共同研究をさらに進めることで、本研究で実現した大口径傾斜型素子の評価を進めていく予定である。

以上、3年間の本研究により、傾斜型 QPM 素子作製の検討を行い、併せて種々の大口径 QPM 素子の光学評価を行った。

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 5 件)

- ① Vincent Kemlin, David Jegouso, Jerome Debray, Patricia Segonds, Benoit Boulanger, Bertrand Menaert, Hideki Ishizuki, and Takunori Taira, Widely

tunable optical parametric oscillator in a 5 mm thick 5% MgO:PPLN partial cylinder, Opt. Lett., vol. 38, no. 6, pp. 860-862, (2013). 査読有
DOI:10.1364/OL.38.000860

- ② M. Hemmer, A. Thai, M. Baudisch, H. Ishizuki, T. Taira, and J. Biegert, 18- μ J energy, 160-kHz repetition rate, 250-MW peak power mid-IR OPCA, Chinese Opt. Lett., vol. 11, no. 1, pp. 013202-1[~]3, (2013). 査読有
DOI:NONE
- ③ Yunpei Deng, Alexander Schwarz, Hanieh Fattahi, Moritz Ueffing, Xun Gu, Marcus Ossiander, Thomas Metzger, Volodymyr Pervak, Hideki Ishizuki, Takunori Taira, Takayoshi Kobayashi, Gilad Marcus, Ferenc Krausz, Reinhard Kienberger, and Nicholas Karpowicz, Carrier-envelope-phase-stable, 1.2 mJ, 1.5 cycle laser pulses at 2.1 μ m, Opt. Lett., vol. 37, no. 23, pp. 4973-4975, (2012). 査読有
DOI:10.1364/OL.37.004973
- ④ Hideki Ishizuki and Takunori Taira, Half-joule output optical-parametric oscillation by using 10-mm-thick periodically poled Mg-doped congruent LiNbO₃ crystal, Opt. Express, vol. 20, no. 18, pp. 20002-20010, (2012). 査読有
DOI:10.1364/OE.20.020002
- ⑤ Hideki Ishizuki and Takunori Taira, Large-aperture, axis-slant quasi-phase matching device using Mg-doped congruent LiNbO₃ [Invited], Opt. Mat. Express, Vol. 1, Issue. 7, pp. 1376-1382, (2011). 査読有
DOI:10.1364/OME.1.001376

[学会発表] (計 7 件)

- ① 石月秀貴, 平等拓範, PPMgLN 素子を用いたピコ秒光励起光パラメトリック発生, 平成 25 年第 60 回春季応物講演会, 29a-B3-3, 神奈川工科大学, 神奈川県厚木市 (Mar. 27-30, 2013).
- ② Hideki Ishizuki, and Takunori Taira, Highly-efficient, half-joule output optical-parametric oscillation by using 10-mm-thick periodically poled Mg-doped congruent LiNbO₃, JSAP-OSA Joint Symposia in 平成 24 年秋季応物講演会, 13p-G2-13, 愛媛大学・松山大学, 愛媛県松山市 (Sept. 11-14, 2012).
- ③ Hideki Ishizuki, and Takunori Taira, Half-joule class, efficient

optical-parametric oscillation by 10-mm-thick periodically poled Mg-doped congruent LiNbO₃, 5th EPS-QEOD EUROPHOTON conference, TuA2, Stockholm, Sweden (Aug. 26-31, 2012).

- ④ Vincent Kemlin, David Jegouso, Jerome Debray, Bertrand Menaert, Patricia Sedongs, Benoit Boulanger, Hideki Ishizuki, and Takunori Taira, Widely and continuously tunable Optical Parametric Oscillator up to 4.8 microns based on 5%MgO:PPLN crystal cut as a cylinder, 5th EPS-QEOD EUROPHOTON conference, TuA6, Stockholm, Sweden (Aug. 26-31, 2012).
- ⑤ Hideki Ishizuki, and Takunori Taira, Fabrication of 10-mm-thick PPMgLN device for high-energy wavelength conversion, Conf. on Lasers and Electro-Optics (CLEO2012), CTh1B.1, San Jose, California, USA (May 16-21, 2012).
- ⑥ 石月秀貴, 平等拓範, Mg 添加 LiNbO₃ への面傾斜型周期分極反転構造の形成, 平成 23 年秋季応物講演会, 1p-ZN-8, 山形大学, 山形県山形市 (Aug. 29 - Sept. 2, 2011).
- ⑦ H. Ishizuki and T. Taira, Fabrication of slant quasi phase matching structure in Mg-doped congruent LiNbO₃, Nonlinear Optics 2011 (NLO2011), NMA4, Kauai, Hawaii, USA (July 17-22, 2011).

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: 9 0 3 9 0 6 7 4

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し