

社会連携研究部門における 非線形光学波長変換応用 ～主に中赤外・擬似位相整合関係～

Nonlinear wavelength conversion
in the *Division of Research Innovation and Collaboration*
～ Mainly on Mid-Infrared & Quasi Phase Matching ~

石月秀貴^{1,2}

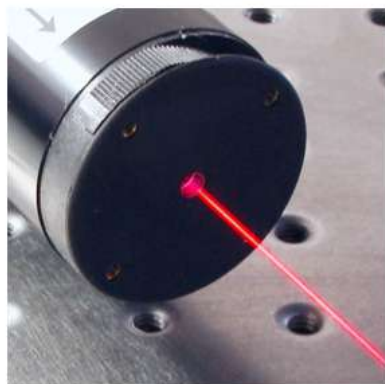
- 1 理化学研究所・放射光科学研究センター・先端光源開発研究部門
兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
- 2 自然科学研究機構・分子科学研究所・社会連携研究部門
愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38

目次

社会連携研究部門でのレーザー光の波長変換

- ・ 非線形光学波長変換
- ・ 波長変換の方式と結晶材料
- ・ 擬似位相整合による赤外域光発生
- ・ 発生光の特性評価系

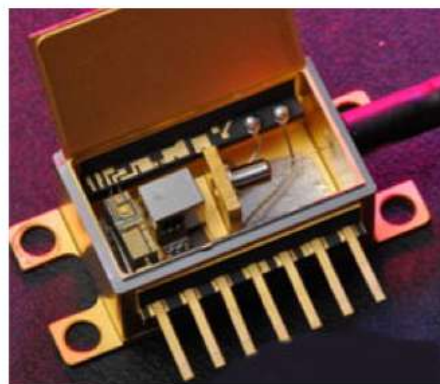
種々のレーザーとその応用



ガスレーザー

Gas laser

He-Ne
CO₂
ArF



半導体レーザー

Semiconductor laser

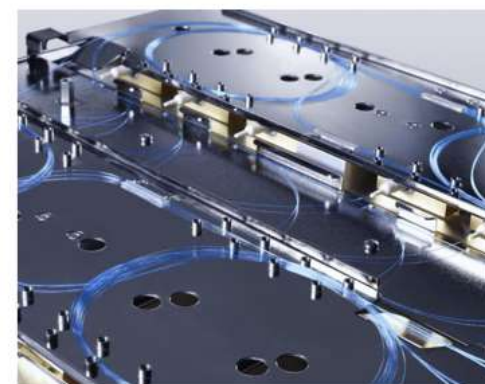
GaN
GaAs
InGaAs



固体レーザー

Solid-state laser

Nd:YAG
Yb:YAG
Ti:Sapphire



ファイバーレーザー

Fiber laser

Er-fiber
Yb-fiber
TmHo-fiber

種々のタイプのレーザー

- 波長
- 連続波とパルス
- 形状 と 大きさ
- 価格 / 安定性
- 応用

Various Lasers

- Wavelength
- CW or Pulse
- Shape and Size
- Price / Stability
- Applications

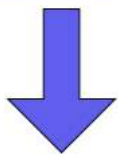
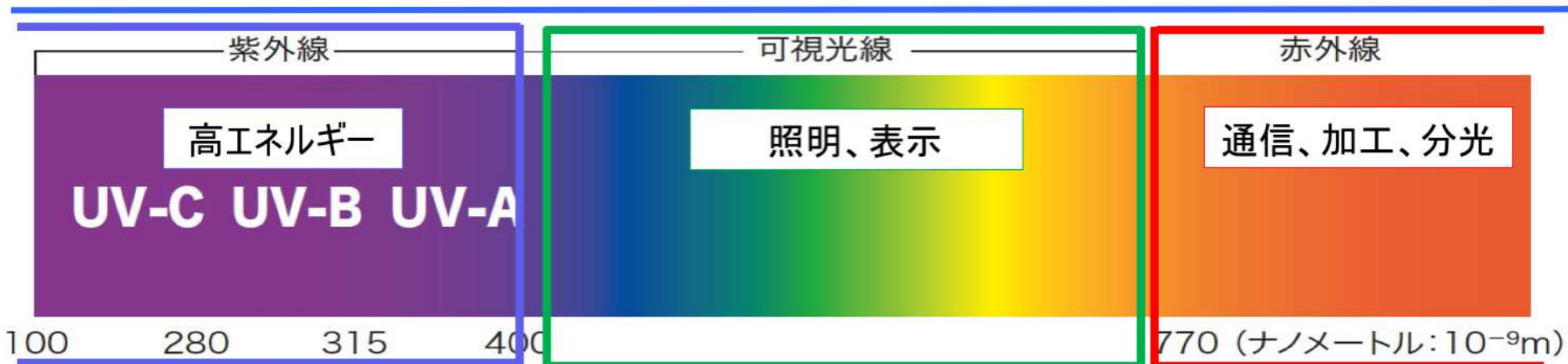
種々の応用

- 材料加工
- 照明 / 表示
- 光通信
- センサー
- 分光分析

Various applications

- Material processing
- Light / Display
- Communication
- Sensing
- Spectroscopy

光の波長と応用



産業/基礎科学応用

殺菌、洗浄
微細加工、フォトリソグラフィ
接着剤硬化、アブレーション、分光

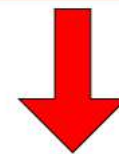
Industry, Basic Science



産業応用 & 日常生活利用

照明、ディスプレイ
可視光通信、光ディスク、光メモリ
加工、改質

Industry, Daily life



光通信/産業/学術応用

光ファイバー通信
レーザー加工
分光分析、天文、etc

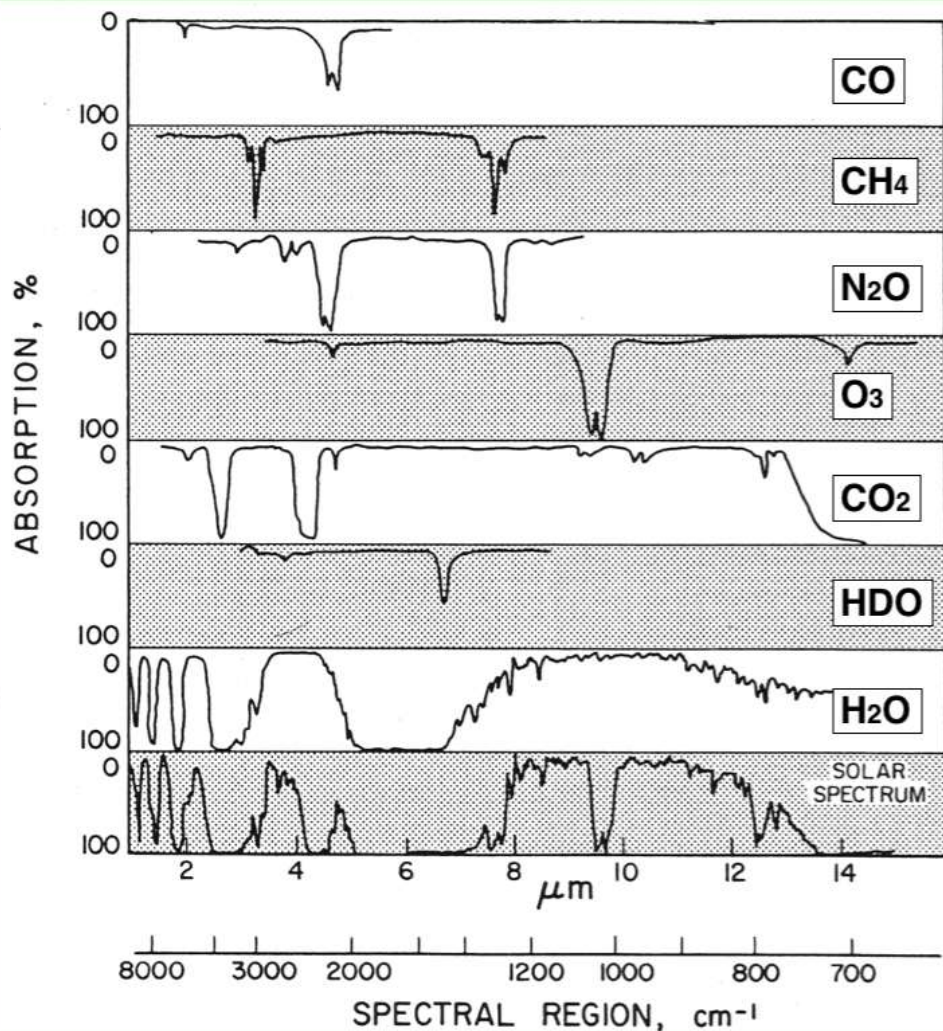
Opt.Comm, Industry, Accademic

用途に応じた波長、スペクトル、パワー、サイズが必要

Requirements (wavelength, spectrum, power, size, etc) depends on applications

中赤外域におけるガスの吸収特性

Absorption spectra of various gases



Absorption wavelength of various gases

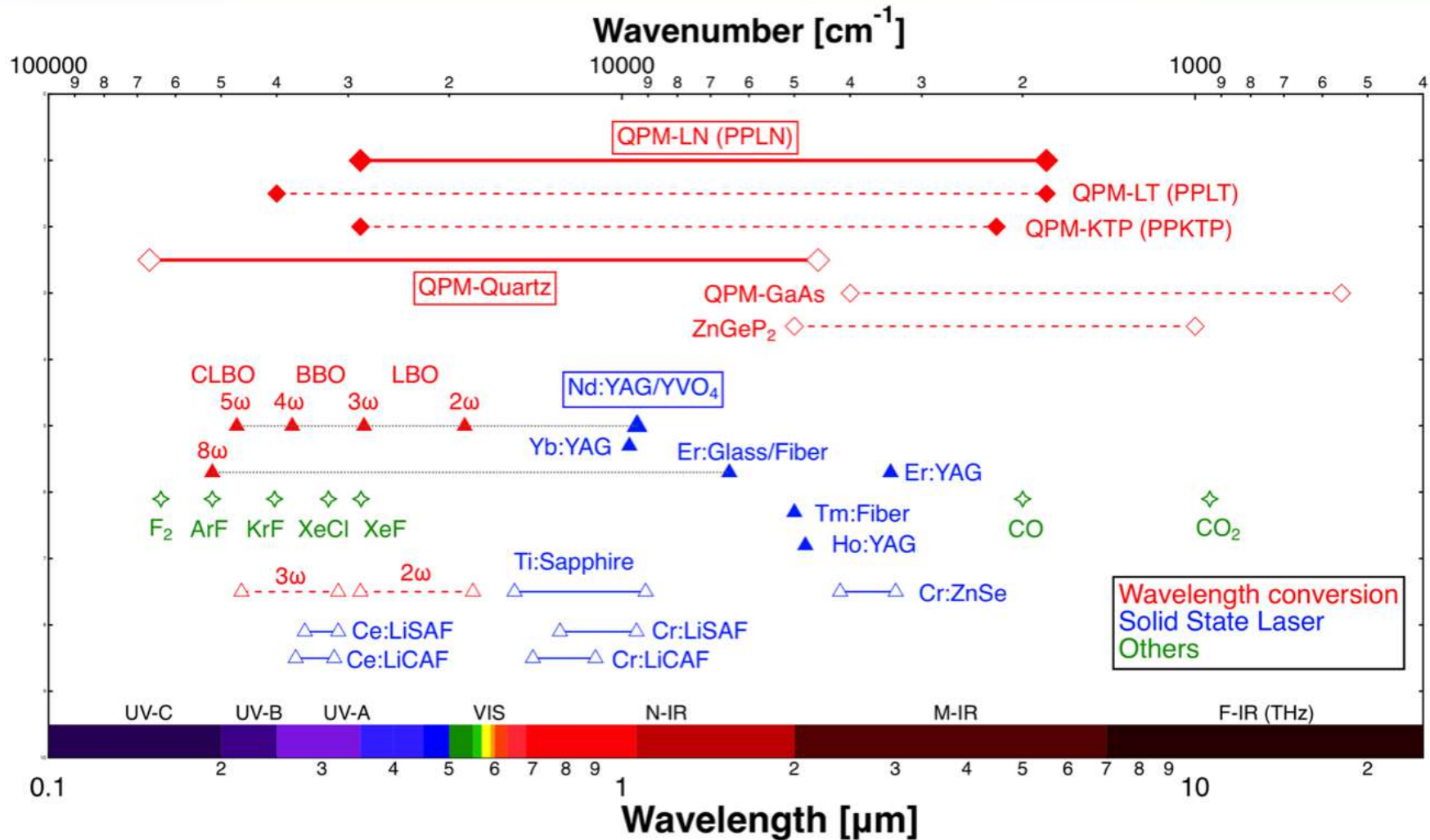
Type	Wavelength	Type	Wavelength
H ₂ O	6.27 μm	SO ₂	9.024 μm
	2.66 μm		8.88 μm
	1.88 μm		4.001 μm
	813 nm	CH ₄	300.1 nm
	727 nm		7.63 μm
etc	3.391 μm		
O ₃	9.508 μm	CO	3.27 μm
	9.504 μm		1.67 μm
NO	253.6 nm	CO ₂	4.709 μm
	5.265 μm		2.35 μm
NO ₂	5.215 μm	14.98 μm	
	6.229 μm	4.28 μm	
	3.44 μm	4.26 μm	
	448.2 nm	2.75 μm	

中赤外光



リモートガス検出
分子分光

レーザー光源の出力波長

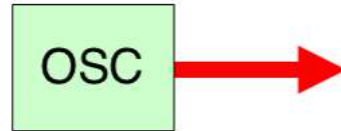


低出力 (CW) : 半導体レーザー、QCレーザー (波長選択)

高出力 (パルス) : 固体レーザー + 波長変換 (波長選択 & 可変)

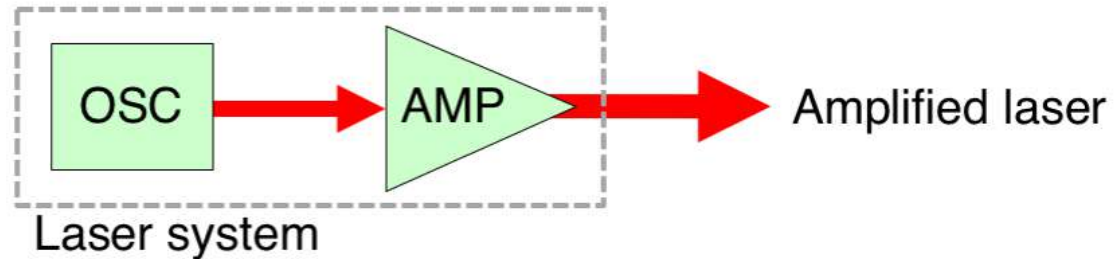
レーザー発振器/増幅器と波長変換器

レーザー発振器

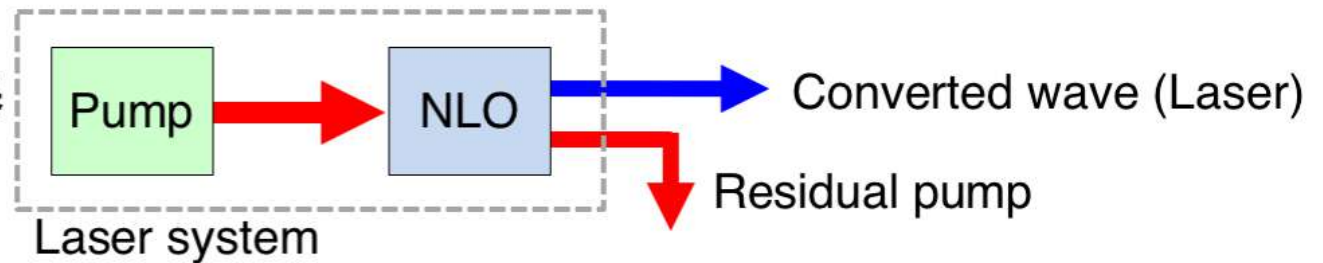


Laser oscillation

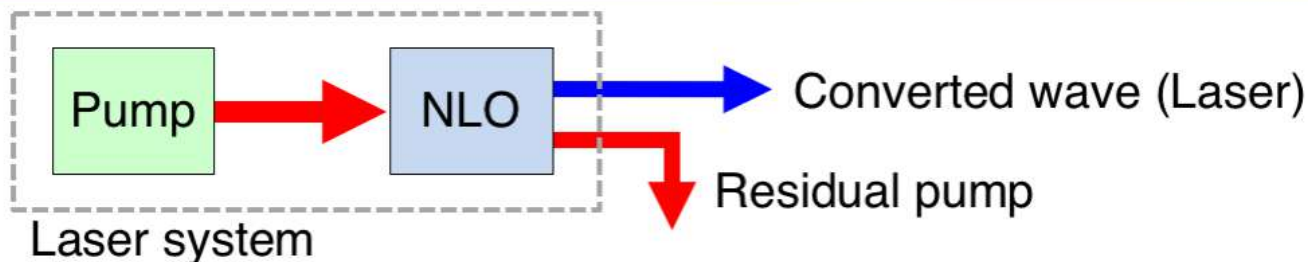
レーザー発振器+増幅器



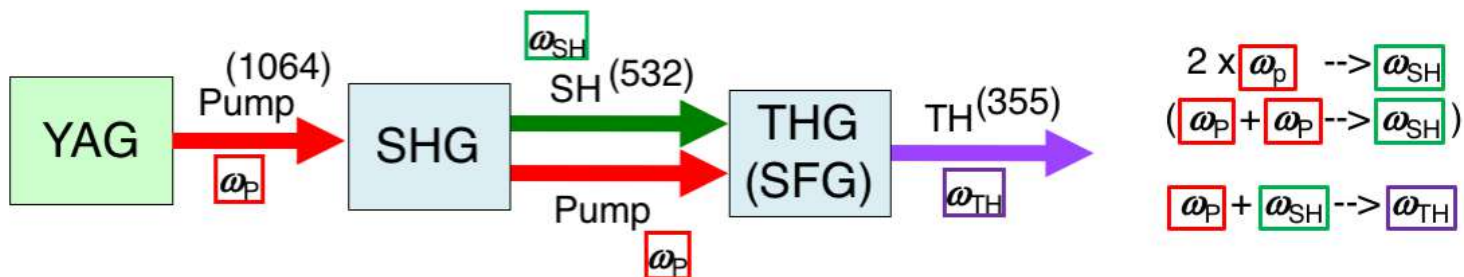
レーザー発振器+波長変換器



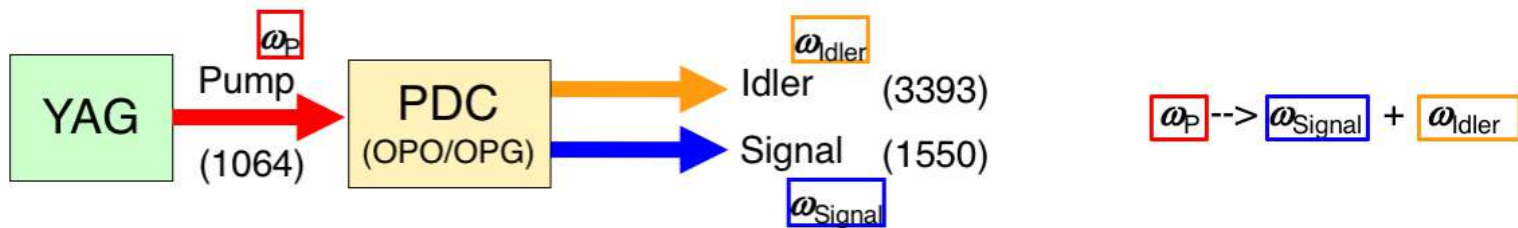
種々の波長変換



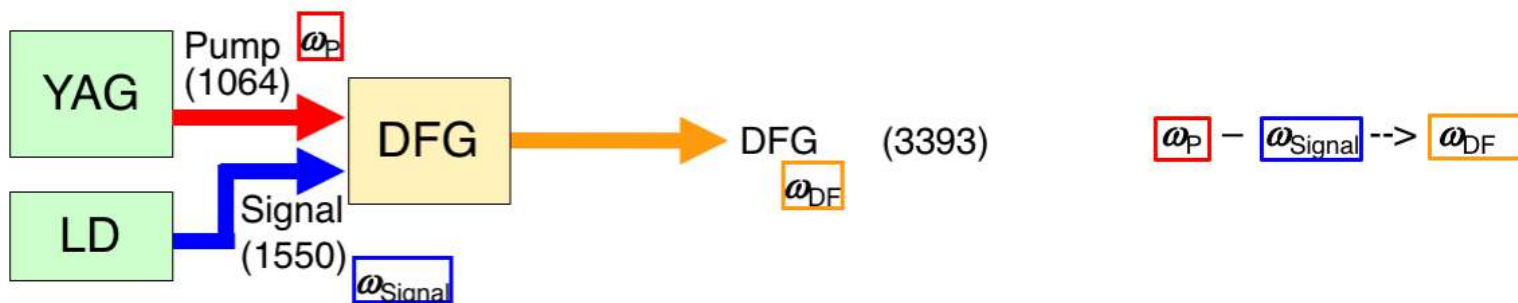
第2高調波発生 (SHG)
 第3高調波発生 (THG)
 和周波発生 (SFG)



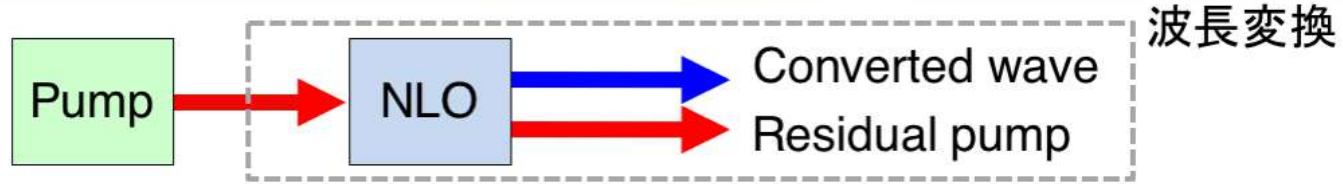
パラメトリックダウン
 コンバージョン (PDC)
 光パラメトリック発振/発生
 (OPO/OPG)



差周波発生 (DFG)



種々の波長変換 2



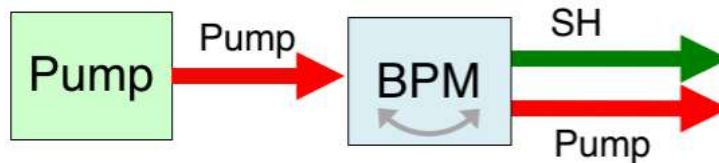
変換効率 **Conversion efficiency** η : depends on $L^2 d^2 I^2$ for SHG

素子長 L : **Device length** [mm]

非線形光学定数 d : **Nonlinear coefficient** [pm/V]

励起強度 I : **Pumping intensity** [W/cm²]

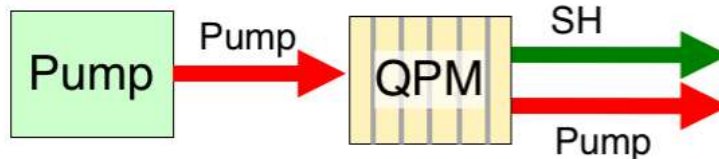
波長変換の可否 **Wavelength conversion available or not ?**



BPM : Birefringent Phase Matching

複屈折位相整合

材料固有の屈折率依存



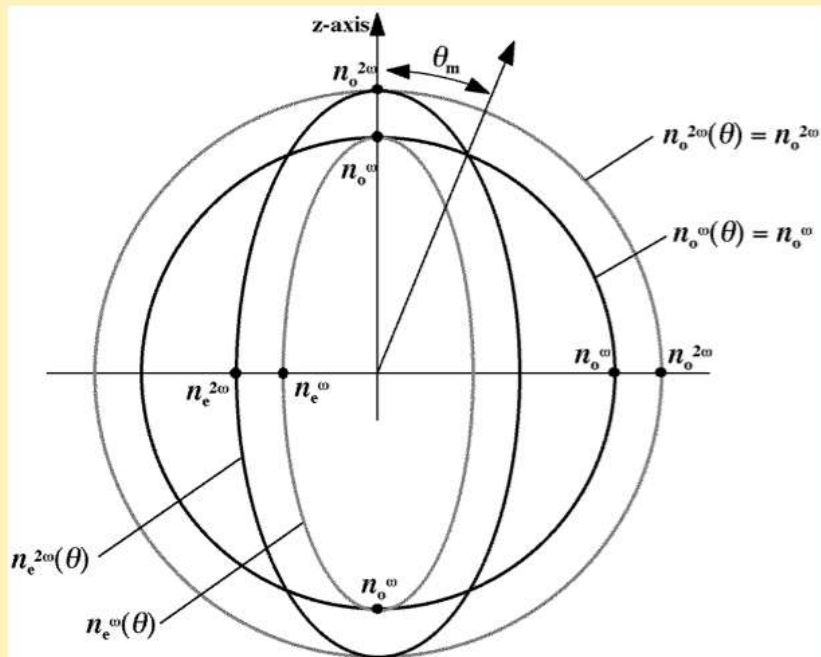
QPM : Quasi Phase Matching

擬似位相整合

人為的な構造制御

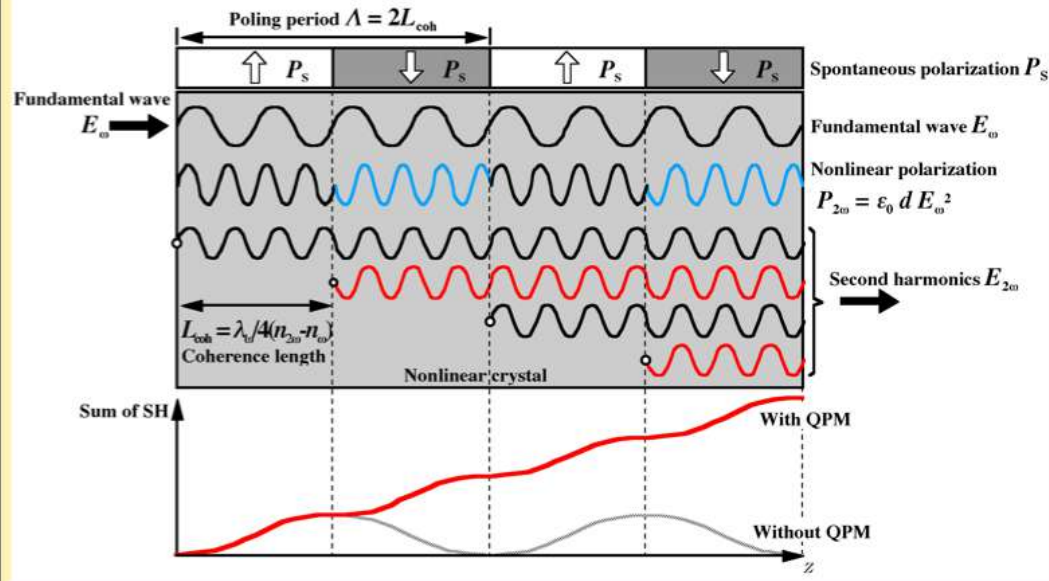
複屈折位相整合と擬似位相整合

Birefringent Phase Matching 複屈折位相整合(BPM)



- 変換可否は屈折率分散に依存
- 材料透明域 \gg 波長変換可能域
- d の実効値 d_{eff} は位相整合条件で変化

Quasi Phase Matching 擬似位相整合(QPM)



- 非線形光学定数 d の反転構造形成で実現 (強誘電体結晶では自発分極の反転)
- 材料透明域全域で波長変換可能
- 任意の d 選択、任意の波長変換選択可能
- d の実効値 d_{eff} は $2d / \pi$

波長変換素子用材料

材料	LN	LBO	水晶
化学式	LiNbO_3	LiB_3O_5	SiO_2
結晶構造	Trigonal	Orthorhombic	Trigonal
点群	3m	mm2	32
透明波長域	0.33 – 5 μm	0.16 – 2.6 μm	0.15 – 2.8 μm
屈折率@1.064 μm	$n_o = 2.234$ $n_e = 2.144$	$n_x = 1.5656$ $n_y = 1.5905$ $n_z = 1.6055$	$n_o = 1.5341$ $n_e = 1.5428$
潮解性	None	Low	None
レーザー損傷閾値 @1.064 μm	~300 MW/cm ² @10 ns (c)	45 GW/cm ² @1.1 ns (b)	700 GW/cm ² @ 0.7 ns (a)
非線形光学係数(pm/V) @1.064 μm	$d_{31} = 4.6$ $d_{33} = 25.2$ (d)	$d_{31} = 0.67$ $d_{32} = 0.85$ $d_{33} = 0.04$ (e)	$d_{11} = 0.30$ (d)
BPMによる波長変換	OK	OK	X
電界印加によるQPM形成	OK	X	X
応力印加によるQPM形成	X	X	OK

同系統の非線形光学材料

LiNbO_3 , LiTaO_3 ,
 KTiOPO_4

LBO, BBO,
CLBO



LiNbO_3

Photo from Yamaju ceramics



水晶

Photo from Wikipedia

- (a) Opt.Express 25, 2369 (2017)
- (b) JJAP 38,L129(1999)
- (c) Authors
- (d) JOSAB 14, 2268 (1997)
- (e) JQE 28,2057 (1992)

LiNbO₃ & LiTaO₃ 結晶



Photo from Yamaju ceramics

LiNbO₃, LiTaO₃

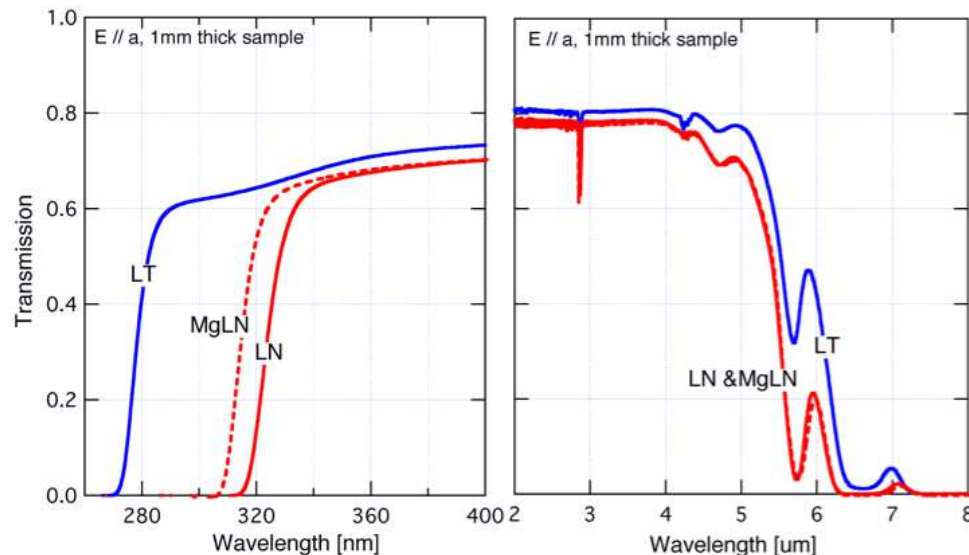
- 広い透明域
 - LN : 330 nm ~ 5 μm
 - LT : 280 nm ~ 5 μm
- 大きな非線形光学定数
 - LN : $d_{33} \sim 25$ pm/V
 - LT : $d_{33} \sim 14$ pm/V
- 優れた電気光学特性、音響光学特性など
- 高品質、大型結晶育成可能
- 導波路作成技術との組み合わせ
- Mg添加による特性向上

Mg添加 コングルエント組成 LiNbO₃, LiTaO₃

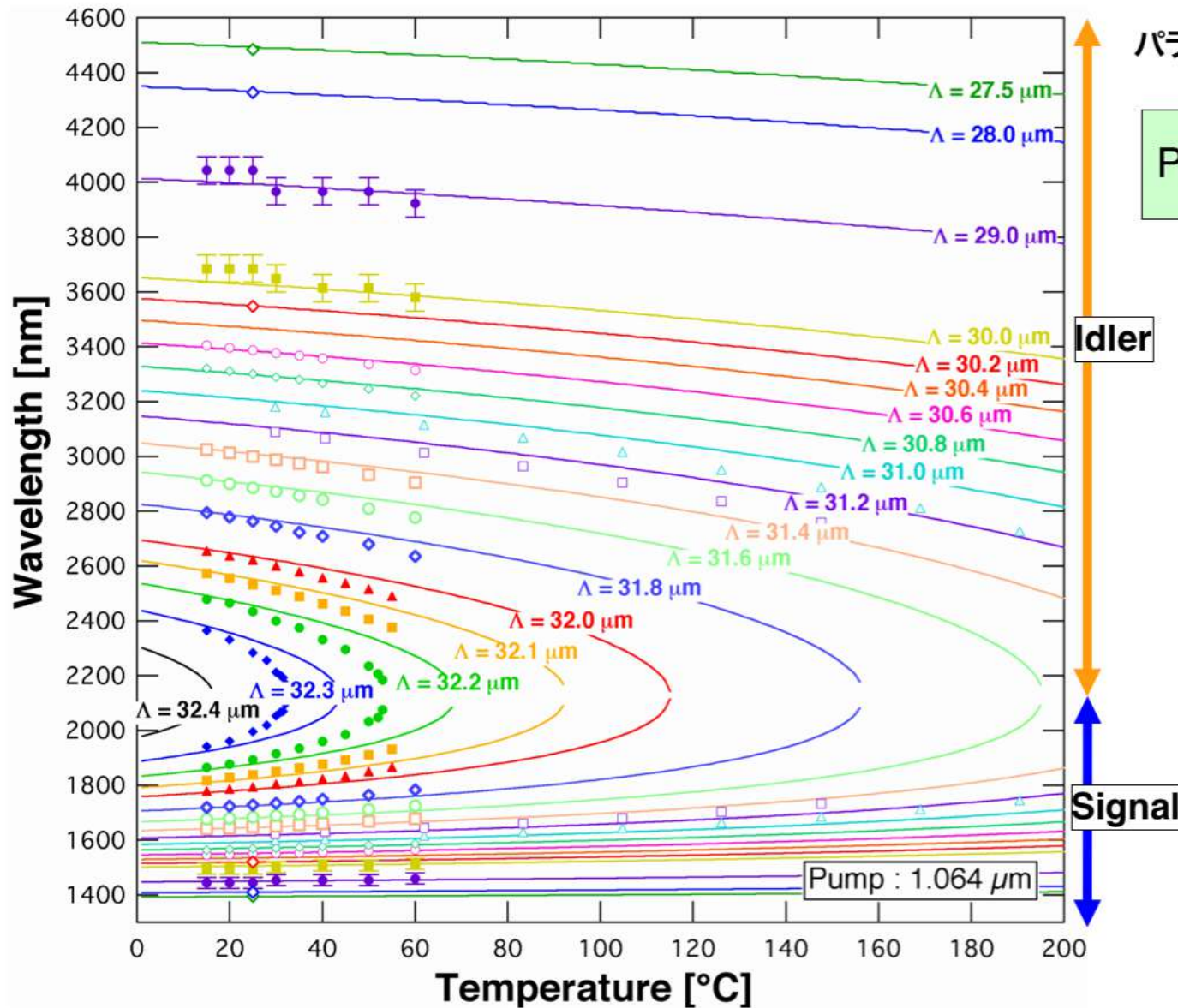
- 透明域の拡大
- 光損傷耐性の向上
- 反転抗電界 E_C の低減 (LN~21kV/mm、LT~21kV/mm)
 - MgLN (5mol%, RT): $E_C \sim 5$ kV/mm
 - MgLT (8mol%, RT) : $E_C \sim 4$ kV/mm

LiNbO₃, LiTaO₃ を用いたQPM 素子

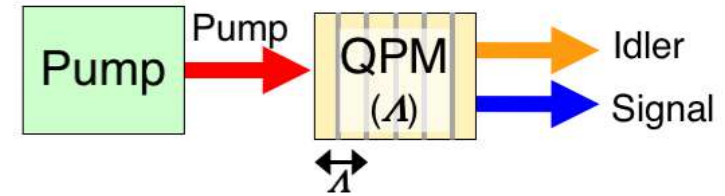
- PP Mg添加 コングルエント LiNbO₃ (PPMgLN) (**PPLN**)
- PP Mg添加 コングルエント LiTaO₃ (PPMgCLT)
- PP Mg添加 ストイキオメトリック LiTaO₃ (**PPSLT**)



QPM素子(PPMgLN)による中赤外光発生域



パラメトリックダウンコンバージョン(PDC)



$$\omega_P = \omega_S + \omega_I$$

$$\Lambda = (n_p / \lambda_p - n_s / \lambda_s - n_i / \lambda_i)^{-1}$$

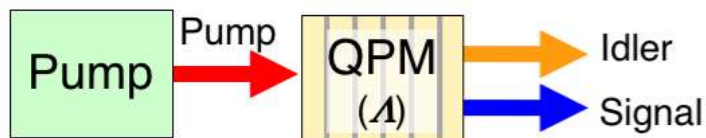
Λ (QPM period) in PPMgLN
= 27.5 ~ 32.4 μm

Pumped by 1.064 μm

Signal & Idler
 $\lambda = 1.4 \sim 4.6 \mu\text{m}$

OPG (共振器無し) と OPO (共振器有り)

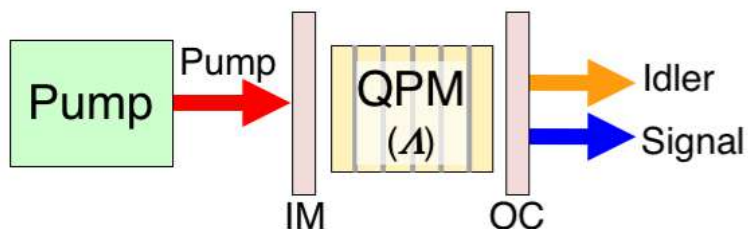
OPG : 光パラメトリック発生



- シンプル構成 (シングルパス)
- 高ゲイン構成が必要
高強度励起光源(例:MCL)

• Requirement : QPM device (with coating)

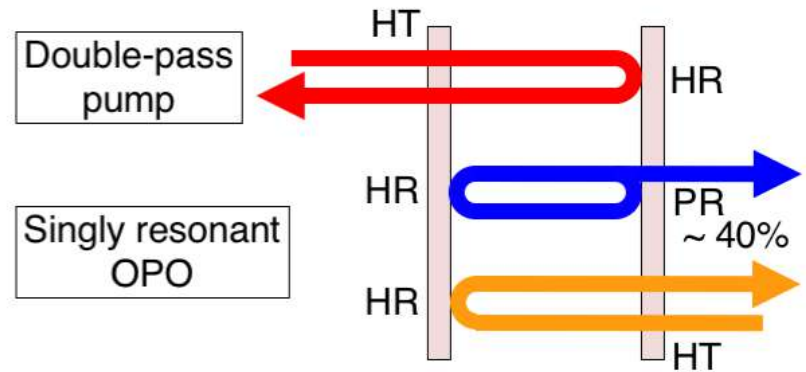
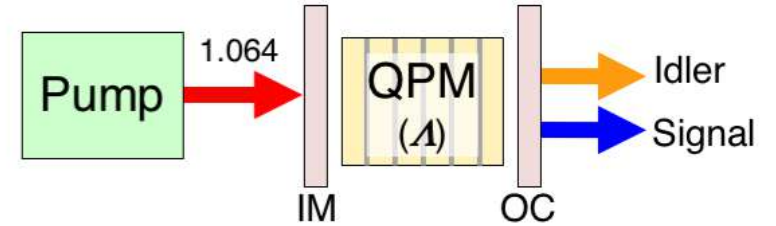
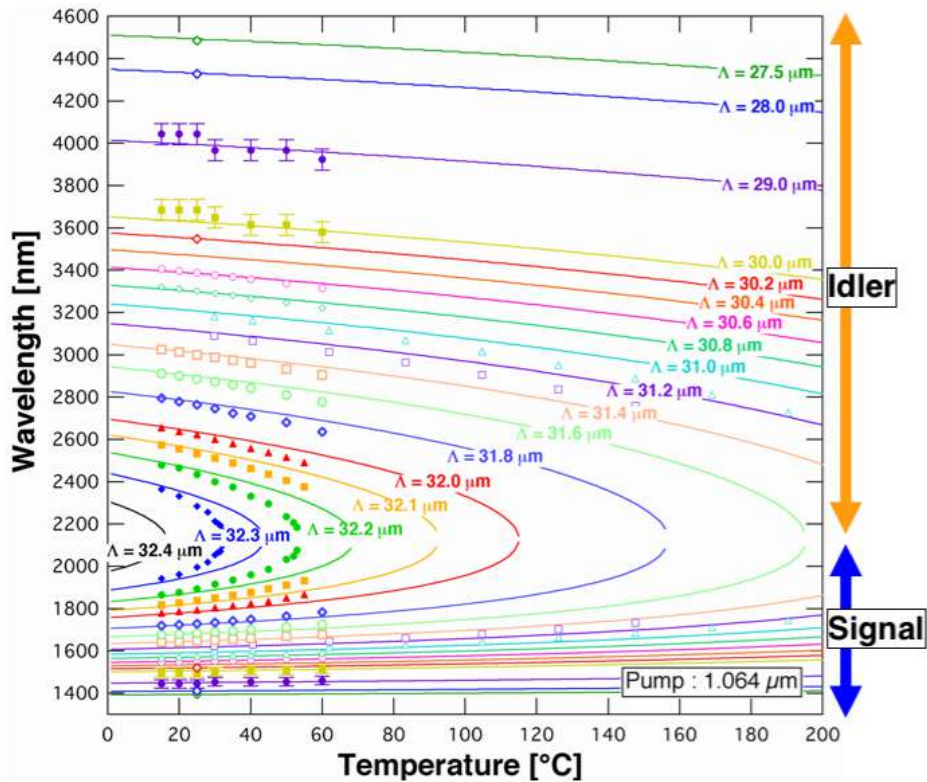
OPO : 光パラメトリック発振



- 複雑な構成 (共振器構成)
入力ミラー、出力ミラー
ミラー調整が必要
- 低ゲイン素子や光源でも可
低強度励起光源 (例: 10 ns パルス光源)
低 d の非線形素子

• Requirements : QPM device (with coating),
Input Mirror, Output coupler

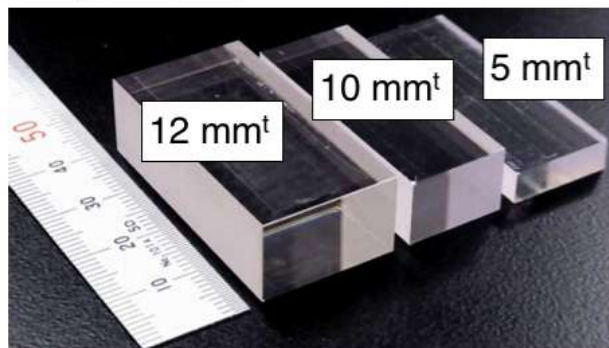
OPO共振器用ミラー



Group Name	UsageType	DB name	Material	OPO type	Pump		Signal		Idler		PumpDamageTH
					PumpWL	PumpCoat	SignalWL	SignalCoat	IdlerWL	IdlerCoat	
OPO1	In	MD369-380	CaF2(IR-grade)	1.8um&2.6um	1.03-1.06	Tmax_ave > 80%	1.5-1.9	Rmax_ave > 99%	2.5-2.8	Rmax_ave > 99%	
OPO1	Out	MD381-392	CaF2(IR-grade)	1.8um&2.6um	1.03-1.06	Rmax_ave > 99%	1.5-1.9	Rave = 40+-5%	2.5-2.8	Tmax_ave >= 85%	
OPO2	In	MD1047-1066	Fused Silica	2.1um	1.03-1.07	T >= 94%	2.06-2.14	R >= 99%			10-20J/cm2
OPO2	Out	MD1067-1086	Fused Silica	2.1um	1.03-1.07	R >= 99%	2.06-2.14	R = 40+-5 %			5-10J/cm2
OPO3	In	MD1294-1305	CaF2	1.5um&3um	1.064	T > 85%	1.45-1.65	Rave > 95%	3.0-4.0	Rave > 95%	1J/cm2@1064nm
OPO3	Out	MD1306-1317	CaF2	1.5um&3um	1.064	R > 99%	1.45-1.65	Rave = 40+-5%	3.0-4.0	Tave > 90%	1J/cm2@1064nm
OPO4	In	MD1384-1403	CaF2	1.5um&3um	1.064	T > 85%	1.45-1.65	Rave > 95%	3.0-4.0	Rave > 95%	1J/cm2@1064nm
OPO4	Out	MD1404-1425	CaF2	1.5um&3um	1.064	R > 99%	1.45-1.65	Rave = 40+-5%	3.0-4.0	Tave > 90%	1J/cm2@1064nm
OPO5	Out	MD1498-1505	CaF2(IR-grade)	1.8um&2.6um	1.03-1.06	Rave > 99%	1.5-1.9	Rave = 40+-5%	2.5-2.8	T >= 85%	
OPO6	In	MD1645-1654	Sapphire	1.8um&2.6um	1.06-1.07	T > 99%	1648-1911	HR (R>99%)	2400-3000	HR (R>99%)	2J/cm2
OPO7	In	MD1655-1664	Sapphire	1.6um&3.3um	1.06-1.07	T > 99%	1500-1680	HR(R>99%) & AR(R<5%)	2900-3500	HR(R>99%) & AR(R<5%)	2J/cm2@1064nm

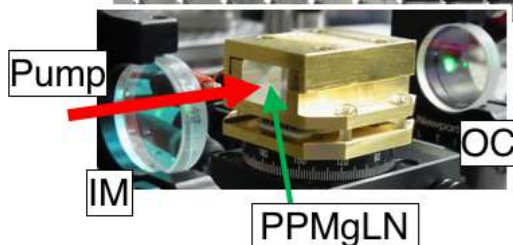
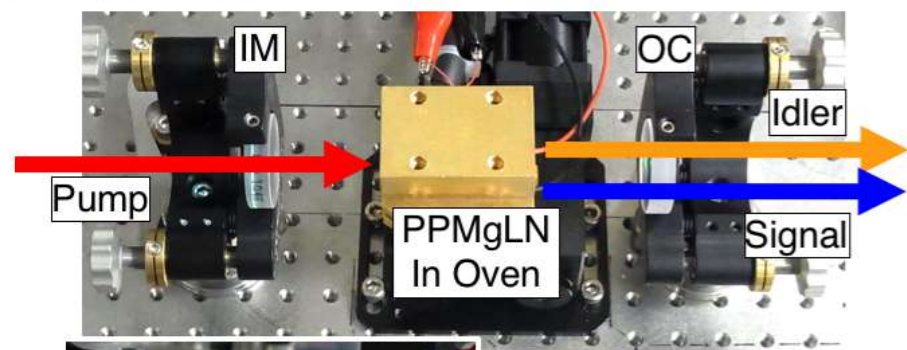
PPMgLN-OPOによる高エネルギー中赤外光発生

大口徑 PPMgLN 素子



- 高エネルギー取り扱いに適した大口徑素子
- 最大素子厚 ~ 12.7 mm (Z軸方向)
- 中赤外光発生用 (QPM周期 ~ 30um前後)

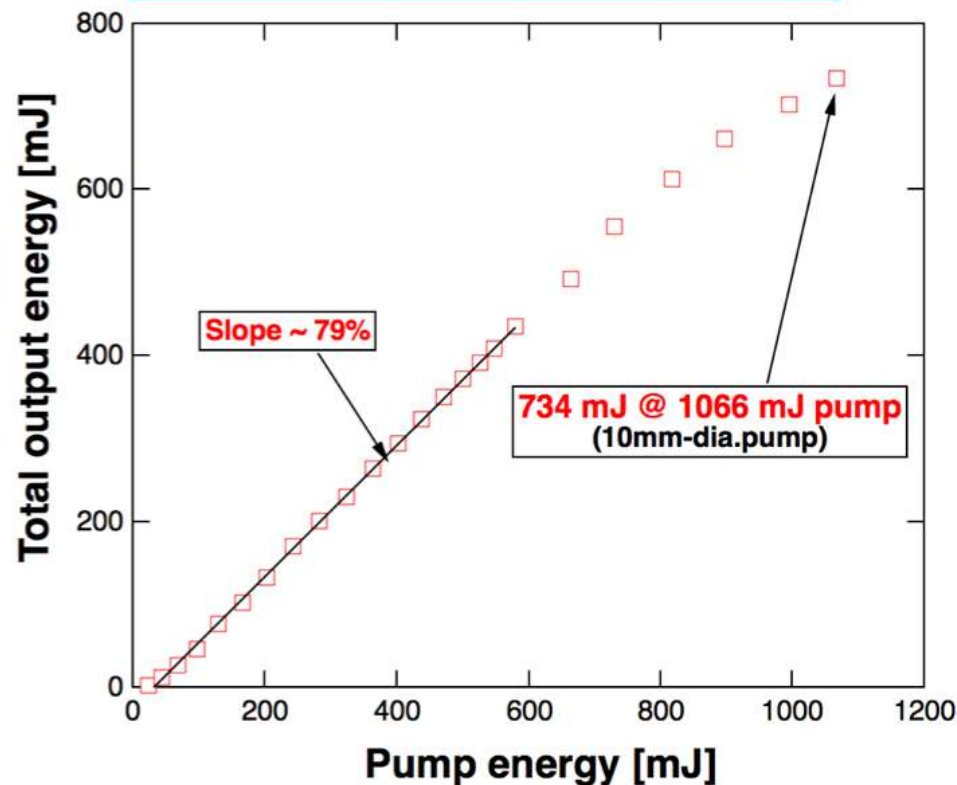
OPO実験配置



- 励起光パルス: 10 ns
- 繰り返し : 10 or 30Hz
- 最大励起エネルギー ~ 1.1 J

10mm厚 PPMgLNを用いた高エネルギーOPO

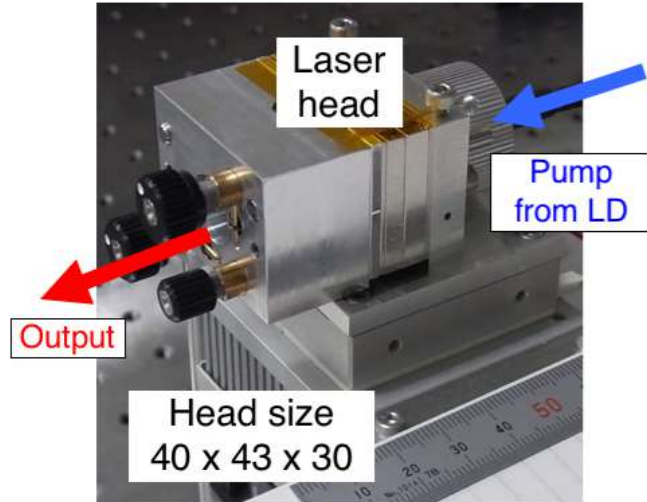
Λ (QPM period) = 32.3 μm \rightarrow $\lambda_{\text{Signal}} \sim 1.99 \mu\text{m}$
 $\lambda_{\text{Idler}} \sim 2.28 \mu\text{m}$



- 大口徑PPMgLN素子を用いたジュール級OPO
- 全変換効率 > 70%

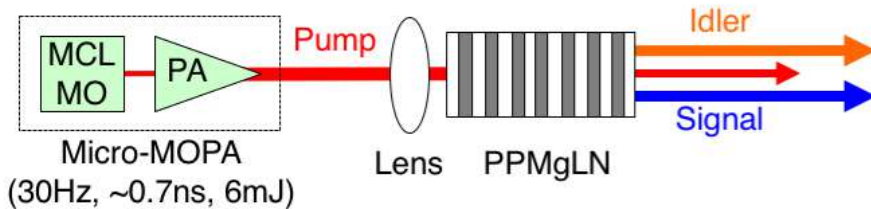
MCL励起OPGによる中赤外光発生

マイクロチップレーザー (Nd:YAG + Cr:YAG)



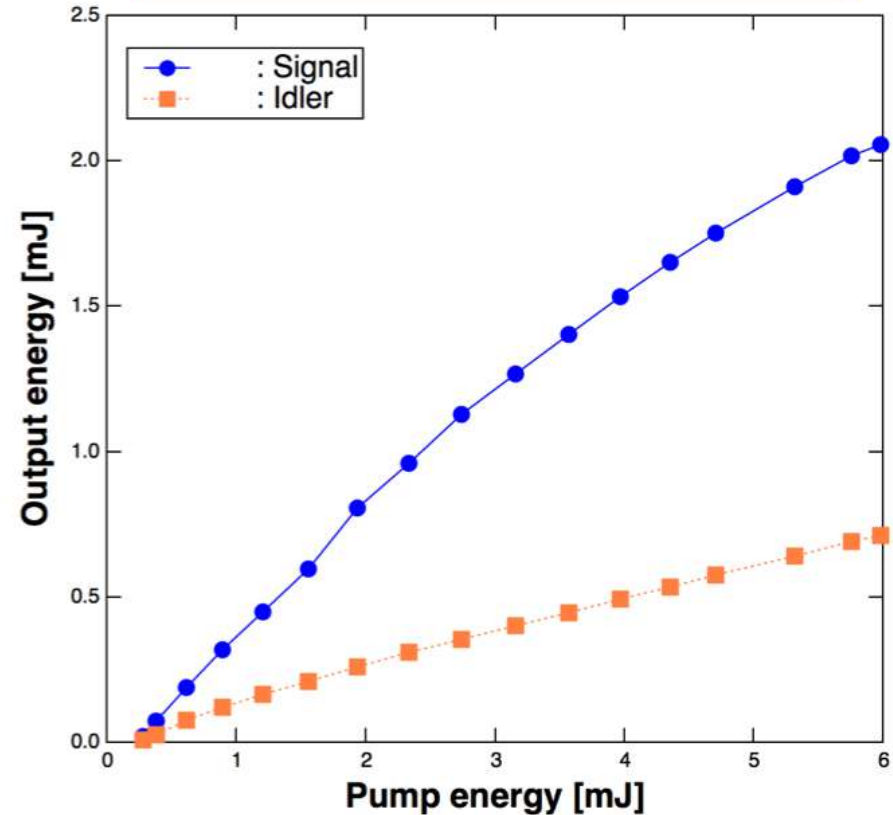
- パルス幅 ~ 0.7 ns
- 発振器出力 ~ 3 mJ @ 30Hz
- $M^2 = 3 \sim 4$

OPG (PPMgLN + Micro-MOPA)



OPG出力特性

Λ (QPM period) = 30.6 μm \rightarrow $\lambda_{\text{Signal}} \sim 1.55 \mu\text{m}$
 $\lambda_{\text{Idler}} \sim 3.37 \mu\text{m}$



- 全変換効率 > 46%
- 共振器無しOPG

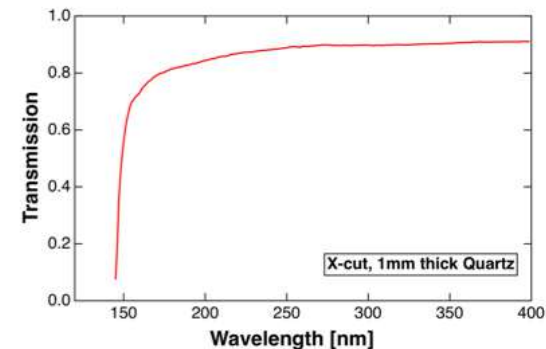
QPM水晶

研究中

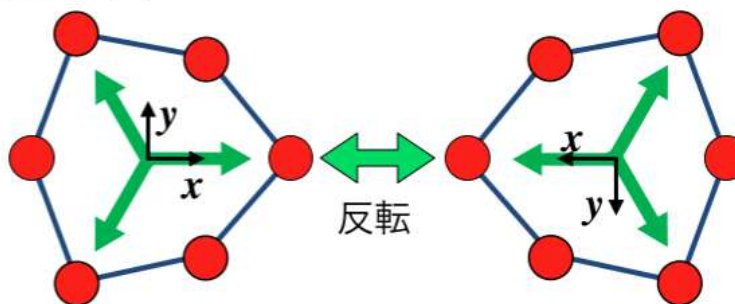
材料	水晶
化学式	SiO ₂
結晶構造	Trigonal
点群	32
透明波長域	0.15 – 2.8 μm
屈折率@1.064 μm	n _o = 1.5341 n _e = 1.5428
潮解性	None
レーザー損傷閾値 @1.064 μm	700 GW/cm ² @ 0.7 ns (a)
非線形光学係数(pm/V) @1.064 μm	d ₁₁ = 0.30
BPMによる波長変換	X
電界印加によるQPM形成	X
応力印加によるQPM形成	OK

水晶 (α-石英、低温型石英)

高耐久
 低吸収、短波長まで高透過 (~150 nm)
 高品質、安定供給 (振動子、光学素子)
 初めてのSHGで利用した非線形結晶
 低複屈折のためBPM不可 → QPMは？



水晶の極性反転

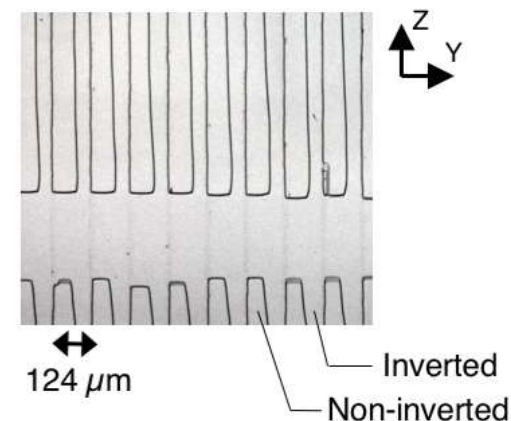
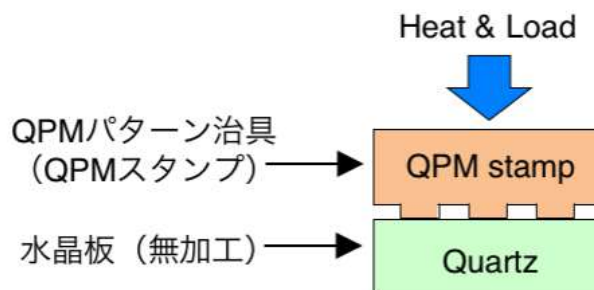


● : Si in α-phase (< 573°C)



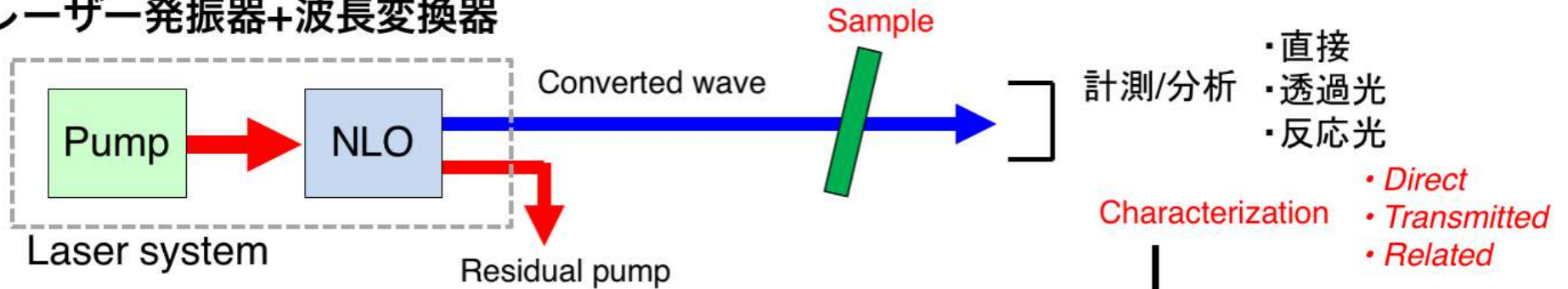
Photo from Wikipedia

QPMスタンプによる極性反転



波長変換光の評価

レーザー発振器+波長変換器



波長/スペクトル測定

- ・ 光スペクトルアナライザ
- ・ 波長計
- ・ 分光器

Spectral measurement

Spectrum analyzer
Wavemeter
Monochrometer

ビーム形状測定

- ・ CCDカメラ/CMOSカメラ
- ・ パイロカメラ(中赤外)
- ・ 波面センサー
(シャックハルトマンセンサー)

Beam measurement

CCD camera
CMOS camera
Pyroelectric camera
Shack-Hartmann sensor

パルス形状測定

- ・ 高速光検出器
- ・ 高速オシロスコープ

Pulse measurement

High speed detector
High speed oscilloscope

波長/スペクトル測定

- Ocean photonics
Spectrum analyzer
USB-4000
CCD type array detector
200-850nm, 650-1100nm



- Ocean photonics
Spectrum analyzer
NIR-Quest512-2.5
InGaAs array detector
900-2500nm



- Soma Optics (相馬光学)
Spectrum analyzer S-2810
InGaAs array detector
SCSI connection
1200-2400nm?



- Yokogawa
Optical Spectrum Analyzer
TairaG : AQ6370D (600-1700nm), AQ6376 (1500-3400nm)
IMS-LC : AQ6373 (350-1200nm), AQ6375 (1200-2400nm)



AQ6370D 600-1700 nm HIGH PERFORMANCE MODEL
OPTICAL SPECTRUM ANALYZER

AQ6375 1200~2400nm
OPTICAL SPECTRUM ANALYZER

AQ6376 1500-3400nm
OPTICAL SPECTRUM ANALYZER

- Burleigh
Wavemeter
WA-4550



- Resolution Spectra
ZS-01, ZS-10



- High Finesse LSA



- CT-25 (for MIR)
- CT-100 (for NIR, now in RIKEN)
- TRIAX (InGaAs Array, mainly for Sato-san)



ビーム形状測定

- CINOGY
CMOS-1202
400-1320nm



- CINOGY
CMOS-1202-OM
Lens less
240-1150nm, for UV



- CINOGY
CMOS-1.001-Nano
Large aperture
400-1320nm



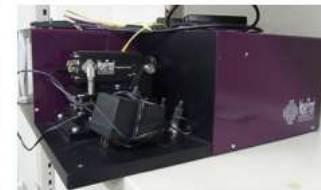
- Old Ophir CCD camera (up to NIR)
2 USB connection type
1 Firewire connection type



- Ophir, Pyroelectric camera for NIR
Pyrocam NIR (Firewire connection)
1.06um to 2um (BK7 window)
124 x 124 pixels



- Ophir, Pyroelectric camera for M-IR
Pyrocam III (Firewire connection)
1.06um to >1000um
(depends on camera window)
ZnSe window for 2-5um
Ge window, for 8-12um
124 x 124 pixels



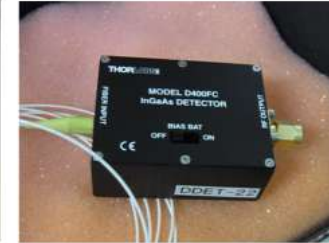
- Old Shack-Hartmann wavefront sensor
ISA-computer connection only
3 ? Camera + 1 interferometer system

Other Shack-Hartmann camera exist?

パルス形状測定 / 高速光検出器

- Thorlabs

DET-110 : 20ns, 350-1100nm
DET-210 : 1ns, 200-1100nm
DET-410 : 5ns, 700-1800nm
D400FC : 0.1ns, 800-1700nm



- Thorlabs

DET08CL/M : 70ps, 800-1700nm
DET08C/M : 70ps, 800-1700nm



- EOT

EOT-3500 : 25ps, 1000-1650nm
EOT-4000 : 30ps, 400-900nm



- Alphas

UPD-50-UD : <50ps, 170-1100nm



パルス形状測定 / 高速オシロスコープ

Low speed, Small

- Tektronix
TDS2014, 100MHz, 1GSa/s



Middle speed

- Tektronix
DPO7354C
3.5GHz, 40GSa/s



High speed, Large

- Tektronix
DPO 71604C
16GHz, 100GSa/s



- TDS3014, 100MHz, 1.2GSa/s



- Agilent / Keysight
DSO-X 91304A
13GHz, 40GSa/s



- Agilent / Keysight
DSO-X 3012A, 100MHz, 4GSa/s



- DSO-X 91304A
12GHz, 40GSa/s



まとめ

- 社会連携研究部門でのレーザー光の波長変換とその特性評価関連機器を紹介
 - QPM素子を用いた中赤外光発生：波長1.4~4.6um帯光
 - ご興味があれば、ご連絡下さい
-
- Nonlinear wavelength conversion and characterization equipment in the *Division of Research Innovation and Collaboration* were presented
 - Mid-IR generation by QPM device : 1.4~4.6um range
 - Contact us if you have interest