

波長変換結晶 LaBGeO₅ の 2 次非線形光学定数精密測定

Accurate measurement of second-order nonlinear-optical coefficients of LaBGeO₅

電気電子情報通信工学専攻 河崎 進太

16N5100025F Shinta KAWASAKI

1. 研究背景・目的

レーザの出現と共に誕生し、今日まで着実に発展してきたのが、本研究の根幹となる非線形光学である。非線形光学が対象とする問題は、光と物質の相互作用に関する基礎的な問題から、光情報化時代を支える技術と期待されるレーザ光の波長変換や、光スイッチといった応用まで幅広い。光学的な非線形現象（光強度に応じた屈折率の変化、光波長の変換、光の増幅）を発現する材料を非線形光学材料と呼び、この材料を評価、設計するために非線形光学定数(d 定数)の正確な値を把握することは不可欠である。また光第 2 高調波素子や光パラメトリック発振器といった波長変換素子の性能を決定付ける極めて重要な物理量は d 定数であり、非線形光学材料固有の値である。

近年、紫外光発生用の波長変換デバイスのほとんどが、LiB₃O₅ (LBO), β -BaB₂O₄ (BBO), CsLiB₆O₁₀ (CLBO) など複屈折位相整合を用いたデバイスのみ実用化されてきた。これらの材料・デバイスの主な問題点は、潮解性が高いことと、複屈折位相整合に伴うビーム変形があげられる。これらを解決する材料として LaBGeO₅ (LBGO) が着目されている。

本研究で測定する LBGO は紫外域まで透明であるのに加え潮解性がなく、電圧印加による分極反転構造の作製が可能である。最近になって高品質な結晶[1]が得られるようになったため、LBGO は新たな紫外光発生用の波長変換デバイスとして期待される。現在既に報告されている LBGO の d 定数を Table. 1 に示す。これらの報告は測定方法が不明であり、結晶の品質も不明である。また、報告件数も少ないことから、未だ LBGO の d 定数の正確な値は明らかでない。

本研究では、高品質な OXIDE 製 LBGO 試料を用いて、既に確立されている精度の高い測定方法と高度な解析手法[2]を用いることで、波長変換材料である LBGO の 2 次非線形光学定数の正確な値を決定することを目的とする。

Table.1.過去の報告による LBGO の d 定数(pm/V)

	A.A. Kaminskiiet al.[3]	Y. Uesu et al.[4]
d_{33}	0.36	1.3
d_{22}	0.24	0.6
d_{11}	0.47	1.7
d_{31}	0.42	0.9

2. 2 次非線形光学効果

非線形光学効果は、強い電場が物質に印加されたときそれに対する応答(分極)の大きさが電場の大きさに非線形に依存する諸現象のことを言う。電場の高次の冪乗に比例する分極によって生じるこの効果は一般には非常に小さいが、レーザのような強い光電場の下では大変大きな効果を示すことがある。

非線形な光学応答を記述するために、物質系の巨視的分極 $P(t)$ は光電場 $E(t)$ のべき級数を用いて次のように表すことができる。

$$P(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} \{E(t)\}^2 + \dots] \quad (1)$$

$$\equiv \epsilon_0 [P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots]$$

第 1 項が線形応答を表し $\chi^{(1)}$ は線形感受率で 2 階のテンソルであり、第 2 項以降が非線形応答で $\chi^{(n)}$ が n 次の非線形感受率で $(n+1)$ 階のテンソルである。ただし、 ϵ_0 は真空の誘電率である。2 次非線形光学効果は 2 次の非線形分極 $P^{(2)}(t)$ によって引き起こされる効果である。

本研究で測定をする LBGO は点群 3 でありその d 定数テンソルは以下の式(2)ようになる。

$$\begin{pmatrix} p_x^{2\omega} \\ p_y^{2\omega} \\ p_z^{2\omega} \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & -d_{14} & -d_{11} \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_x^2 \\ E_x^2 \\ 2E_y E_x \\ 2E_z E_x \\ 2E_x E_y \end{pmatrix} \quad (2)$$

3.2 測定手法

Fig.2 にウェッジ法を用いた測定系(基本波波長 1064 nm)を, Fig.3 にウェッジ法を用いた測定系(基本波波長 532 nm)を示す. 測定にはオキサイド製 LBG0 結晶をウェッジ状(ウェッジ角 0.28 °)に加工・研磨した試料(5 mm x 10 mm x 中心厚さ 190 μm)を用いた. また基本波光源には, Fig.2 では波長 1064 nm の半導体レーザー励起 Nd:YAG 固体レーザー(CryLaS Laser System DSS1064-Q3)を, Fig.3 では波長 532 nm の単一周波数発振レーザー(Coherent Verdi-V10)を用いた. まず, 誘電ミラーでビームラインを高さ 260 mm に調節したのち, レンズを 2 枚用いてコリメートする. 基本波は, 偏光板と半波長板を用いることにより, 結晶に入射させるレーザー光を適切な直線偏光にする. これにより, 成分 d_{33} , d_{32} , d_{22} , d_{11} , d_{24} を測定することができる. 次に偏光板と半波長板からわずかに発生する第 2 高調波を取り除くために赤外(またはグリーン)透過フィルターを通し, 基本波のみを LBG0 に入射させた. LBG0 は, 光軸(z 軸)が地面に対して上を向くように置き, ビームの進行方向と垂直な方向に 100 μm ずつスライドさせることで試料の厚さを変えていく. そうすることで相互作用長の変化に依存する第 2 高調波パワー(Maker Fringe)を検出した. 試料にレーザー光が入射し第 2 高調波が発生するが, 基本波も試料を透過するので, ハーモニックセパレーターと赤外(またはグリーン)カットフィルターにより基本波を取り除き第 2 高調波のみを光電子増倍管(PMT)で検出した. PMT で検出した信号は, I-V アンプで増幅した後, ボックスカー積分器(Stanford Research Systems, SR250)により積算平均化した値をパソコンに取り込んだ.

3. 2 次非線形光学定数測定原理

3.1 ウェッジ法

本研究ではウェッジ法を用いて d 定数の測定を行う. ウェッジ法とは, くさび状の試料に基本波を垂直に入射し光路に対して垂直に試料を移動させることによって, 発生する第 2 高調波パワーの試料厚さ依存性(MakerFringe)を測定する方法である. 発生する周波数の 2 倍の第 2 高調波(SHG:Second Harmonic Generation)パワーは, ビーム径が透過する試料厚さ l に依存し, 以下の式(3)で表される.

$$P^{2\omega} = \frac{2\omega^2}{\epsilon_0 c^3} \frac{d^2}{n_\omega^2 n_{2\omega}} \frac{(P^\omega)^2}{\pi w_0^2} l^2 \frac{\sin^2(\Delta k l / 2)}{(\Delta k l / 2)^2} \quad (3)$$

ここで, $P^{2\omega}$, P^ω :周波数 2ω , ω でのパワー ϵ_0 :真空の誘電率 w_0 :ビーム半径 n :屈折率 Δk :位相不整合量 ω :基本波の周波数である. 式(2)より, 第 2 高調波のパワー $P^{2\omega}$ は l の変化に伴って Fig.1 のように変動する.

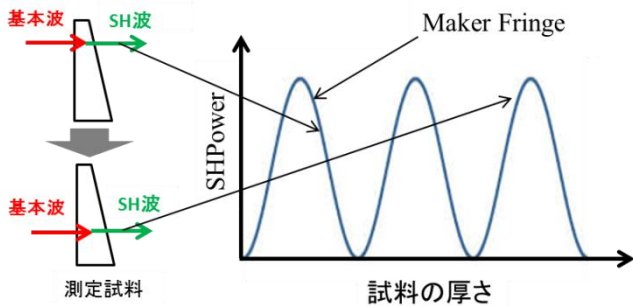


Fig.1. Maker Fringe の原理

この曲線が MakerFringe であり, 試料内で発生する多重反射干渉効果を完全に考慮した解析[2]を行うことによって d 定数を得ることができる.

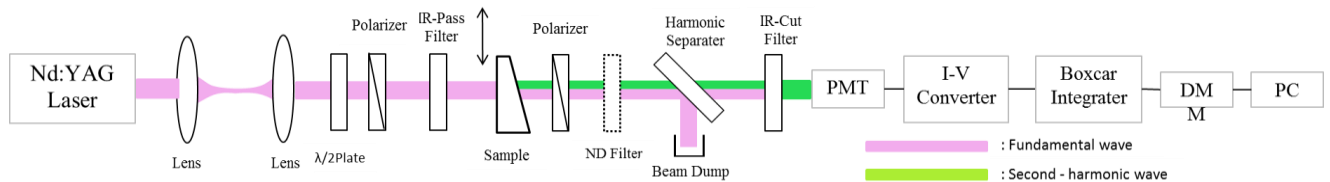


Fig.2. ウェッジ法による測定系(基本波波長 1064 nm)

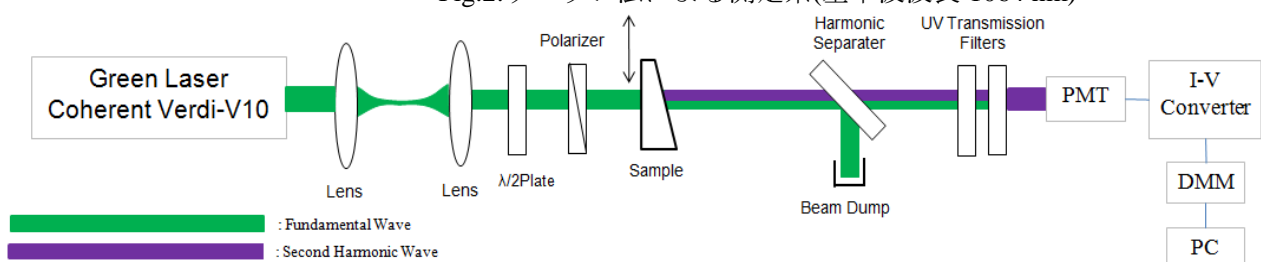


Fig.3. ウェッジ法による測定系(基本波波長 532 nm)

4. LBGO の屈折率測定

本研究では、LBGO の d 定数の測定のほかに解析の際に必要な屈折率の測定も行った。

4.1 測定手法

最も高い精度で屈折率の絶対値を得ることのできる最小偏角法を用いて波長 1064 nm, 532 nm における LBGO の常光線屈折率 n_o と異常光線屈折率 n_e を測定した。この際、波長 1064 nm は赤外範囲の波長であるため精密分光計のコリメーター部からさらに IRViewer を繋げることでスペクトルを観測する。また、測定誤差を抑えるために IR Viewer は常に三脚に固定しながら測定した。使用したデジタル精密分光計は、ロータリーエンコーダによって ± 1 秒の精度で角度測定が可能となっている。また、測定試料には OXIDE 製 LBGO プリズム (Fig.3) を使用した。

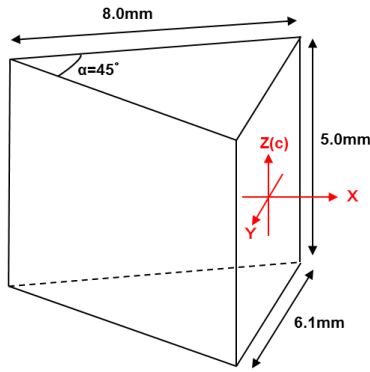


Fig.4. 測定に使用した LBGO プリズム

4.2 測定結果

上述した測定手法から測定した偏角 δ から式(4)を用いて LBGO の常光線屈折率 n_o と異常光線屈折率 n_e を求めた結果を Table.2 に示す。

$$n = n_o \times \frac{\sin\theta_1}{\sin\phi_1} = n_o \times \frac{\sin\left\{\frac{\alpha + \delta_{min}}{2}\right\}}{\sin\left(\frac{\alpha}{2}\right)} \quad (4)$$

Table.2. 本研究で求めた LBGO の屈折率

	常光線屈折率 n_o	異常光線屈折率 n_e
波長 532 nm	1.8270	1.8671
波長 1064 nm	1.8019	1.8403

A.A.Kaminskii らによって報告された屈折率の値と比較すると、波長 532 nm で n_o は 7×10^{-4} , n_e は 8×10^{-4} 大きく、波長 1064 nm で n_o は 4×10^{-4} 小さく、 n_e は $8 \times$

10^{-4} 大きい値となった。

5. LBGO の 2 次非線形光学定数の決定

5.1 d 定数の決定

Fig.2 の測定では既に非線形光学定数 d が求まっているコングルエント組成 LN (波長 1064 nm において $d_{33} = 25.2 \text{ pm/V}$ [5]) を参照試料とし、基本波パワー、ビーム径、屈折率を用いてフィッティングを行い、参照試料と測定試料の比をとることで X-cut LBGO 試料から d_{33} を決定する。その後、求めた d_{33} を参照することで X-cut LBGO 結晶と Y-cut LBGO 結晶から得ることができる d_{33} , d_{22} , d_{11} , $d_{32}(=d_{31})$ 成分を IGOR にて求めた。測定結果を Fig.5, Fig.6, Fig.7 に示す。ここで、プロットは実測値であり、曲線が理論値である。

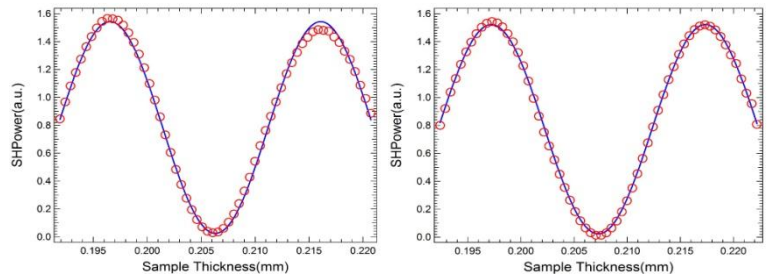


Fig.5. X-cut LBGO d_{33} (左) と Y-cut LBGO d_{33} (右) の Maker Fringe

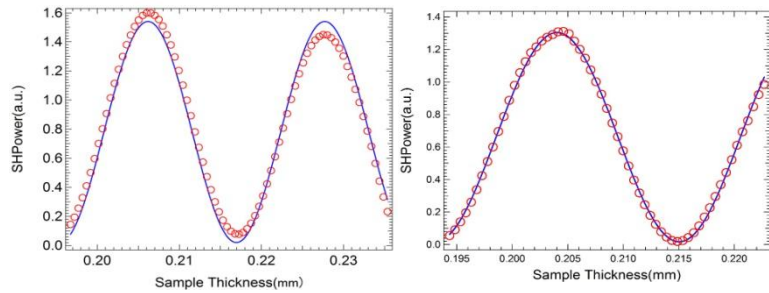


Fig.6. X-cut LBGO d_{22} (左) と Y-cut LBGO d_{11} (右) の Maker Fringe

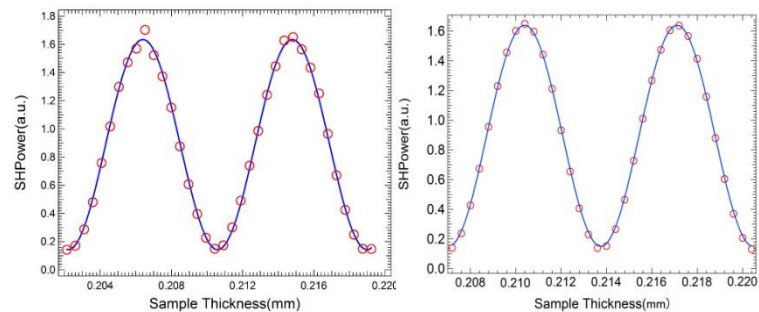


Fig.7. X-cut LBGO d_{32} (左) と Y-cut LBGO d_{31} (右) の Maker Fringe

測定結果より、実測値と理論値が測定範囲全域にわたってよく一致していることがわかる。これらの測定結果を試料の位置でのパワー49.6 mW、ビーム径 456.6 μm 、本研究で求めた屈折率を用いて解析[2]した結果を Table.3 に示す。

Table.3. 本研究で求めた LBG0 の d 定数

d_{33}	d_{22}	d_{11}	$d_{32}(=d_{31})$
0.70 pm/V	0.63 pm/V	0.35 pm/V	0.18 pm/V

また Fig.3 の測定において X-cut LBG0 結晶を用いて d_{33} を測定した結果を Fig.8 に示す。

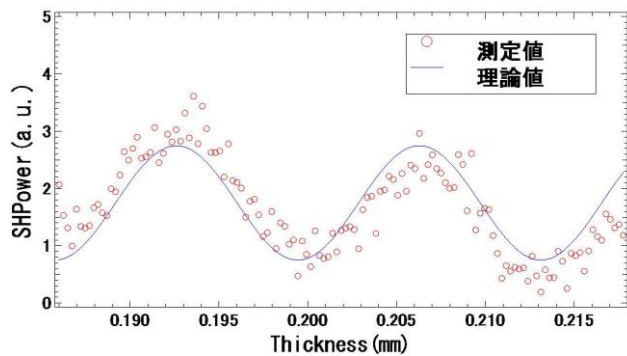


Fig.8. X-cut LBG0 d_{33} の Maker Fringe

基本波波長 1064 nm の時とは異なり、理論的な Maker Fringe を測定できなかった。今後測定系の改善を行い、理論的な MakerFringe の測定を行う。

5.2 コヒーレンス長

コヒーレンス長は第 2 高調波パワーの 2 乗に反比例する値であり、以下の式(5)から本研究で求めた屈折率を用いて算出したコヒーレンス長 l_c を Table.4 に示す。

$$l_c = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\lambda^\omega}{4|n^{2\omega} - n^\omega|} \quad (5)$$

Table.4. 屈折率から求めたコヒーレンス長 l_c

$l_c(d_{33})$	$l_c(d_{32})$	$l_c(d_{22})$
9.925 μm	4.080 μm	10.60 μm

また、コヒーレンス長は Maker Fringe の半周期でもあるため、測定した Maker Fringe からコヒーレンス長を求めた。それらの結果を Table.5 に示す。

Table.5. Maker Fringe から求めたコヒーレンス長 l_c

$l_c(d_{33})$	$l_c(d_{22})$	$l_c(d_{11})$	$l_c(d_{31})$
9.728 μm	10.57 μm	10.65 μm	4.072 μm

これらの結果を比較すると、すべての成分において

誤差率は 2% 以下であり、コヒーレンス長からも屈折率、Maker Fringe とともに精密な測定がされていることがわかる。

6. 総括

高品質な LBG0 結晶を用いて既に確立されている測定方法により屈折率と基本波波長 1064 nm における d 定数の精密測定に成功した。また、精密に測定された結果を用いて、高度な解析手法[2]を用いることで LBG0 の 2 次非線形光学定数 d_{33} , d_{22} , d_{11} , $d_{32}(=d_{31})$ を決定した。今後の課題としては、屈折率に関して再現性を確認し、測定精度を高めるとともに基本波波長 532 nm における MakerFringe の測定を行うことである。また、 d 定数に関して、理論的な MakerFringe を測定できていない $d_{24}(=d_{15})$ 成分の精密測定である。

謝辞

本研究を取り組むにあたり、庄司一郎教授より懇切丁寧なご指導と多大なる助言を頂いたことを心より感謝いたします。また、様々な場面でご協力いただきました庄司研究室の皆さまにも感謝申し上げます。

参考文献

- [1] J. Hirohashi *et al.*, Tech. Dig. CLEO 2015, paper SM4I.7.
- [2] I. Shoji *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2268-2294 (1997).
- [3] A. A. Kaminskii *et al.*, Phy. Stat. Sol. (a) **125**, 671 (1991).
- [4] Y. Uesu *et al.*, Ferroelectrics. **169**, 273-280 (1995).
- [5] D.A. Roberts, IEEE J. Quantum Electron. **28**, 2057-2074 (1992).

研究業績

有査読国内外学会発表

- The 24th Congress of the International Commission for Optics, Tu1D-07

Shinta Kawasaki, Yusuke Honda, Ichiro Shoji

“Accurate measurements of second-order nonlinear-Optical coefficients of LaBGeO₅”

- 第 78 回応用物理学会春季学術講演会, 7p-C14-2

河崎進太, 本多勇介, 庄司一郎

“波長変換材料 LaBGeO₅ の 2 次非線形光学定数精密測定 II”