レーザー技術ノート

光パラメトリック発振器による高出力
ピコ秒連続波長可変レーザー

高木 芳弘*・住谷 実*・中島 信昭*・吉原 経太郎*

(1982年5月29日 受理)

High-Power UV-Visible-IR Continuously Tunable
Picosecond Laser Using Optical Parametric OscillatorYoshihiro TAKAGI*, Minoru SUMITANI*, Nobuaki NAKASHIMA*
and Keitaro YOSHIHARA*

(Received May 29, 1982)

1. はじめに

非線形結晶を用いた光パラメトリック発振に関する報告は1965年に Giordmaine¹⁾らが LiNbO_3 を用いて $0.7 \sim 2.0 \mu\text{m}$ の発振に成功して以来尠大な数に昇っているが、広い波長範囲をカバーできるという特徴にも拘らず色素レーザーのように可変波長光源として実用に供されている例は非常に少ない。その理由として結晶が比較的高価であることの他に実用的な高出力を得るにはかなり強力なポンピング用光源を要することが挙げられる。この意味で高い尖頭値をもつパルス光が得られるモードロックレーザーは光パラメトリック発振に非常に適した光源と言える。実際、モードロックパルスを用いれば光路内に結晶を挿入するだけで single pass でも発振させることができる。しかし光パラメトリック発振は高調波発生の場合と異なり、位相整合条件を満足するシグナル波とアイドラ波の組合せがポンピングビームの光軸を中心として角度

分布するので、一般に出力全体ではスペクトル輝度は低い。共振器を構成できればこれを改善できるが、単一ピコ秒パルスでは共振器長を 1 mm 以下にしなければならないのでこれは困難である。次善の策としてパラメトリック発振器の共振器長をモードロックレーザーの共振器長に一致させてモードロックパルス列を用いて同期的にポンピングする方法がある。しかし筆者らの経験では広い発振波長域をカバーできる反射鏡が必要なことと、取出された出力のパルス列から単一パルスを切出して増幅しなければならない不便が残ることなどの欠点があった。

最近のピコ秒光パラメトリック発振に関する報告²⁾では、同じ角度でカットされた2個の結晶をカスケードに配置して後側の結晶で発振光に対しフィルター効果と増幅作用をもたせる手段がしばしば用いられている。

筆者らは上記の方法を採用し、モードロック YAG レーザーの基本波とその2, 3, 4倍高調波を用いて種々の非線形結晶について可視と

* 分子科学研究所 (〒404 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38番地)

* Institute for Molecular Science (Okazaki, Aichi 444)

赤外域の光パラメトリック発振を調べてきたが最近その高出力化に成功し紫外領域への波長変換も行うことができた。現在は波長範囲を更に短波長側に広げることがを試みているが、以下にシステムの現状について報告する。

2. モードロック YAG レーザー 及び 2, 3, 4 倍高調波発生

高い効率で光パラメトリック発振(以下OPOと呼ぶ)・増幅(OPOA)を行わせるためには高い励起密度($1\text{ GW}/\text{cm}^2$ 以上)のポンピング光が必要となるので、ビーム断面が十分均質でないとき非線形結晶を破壊する恐れがある。また3倍、4倍高調波を光源とするOPOAや、OPOAの出力を光混合等によって更に波長変換させる場合は最終出力を得るまでに数段の非線形過程を経ることになるので、もとなるYAGレーザーを十分安定に発振させなければならない

Fig. 1 Arrangement of the experimental system. M. L. YAG: Mode-locked YAG laser, SD: Saturable dye, SPS: Single pulse selector, SF: Spatial filter, SA: Soft aperture, F: Filter, and CL: Cylindrical lens.

い。そうでないと最終的にはこれが強調されて大きな出力変化となって現われる。Fig. 1 に光学系全体の構成を示す。モードロック YAG レーザー発振器は6本のインバーの骨組に固定されている。100%ミラーはモードロッキング用色素セル片側の窓を兼ねており、これに色素(日本感光色素NDL 102)の1, 2ジクロロエタン溶液を循環させている。安定な発振を得るために発振の繰返しを通常 2 Hz 以上で行い、増幅段のフラッシュの繰返しはクロックを分周して約 1 Hz で行っている。これにより発振波形の変動は数%以下に抑えられた。発振段の直後に置かれた可飽和色素セルは後段からのフィードバックを防いでいる。スペーシャルフィルタは増幅段による自己収束を防ぐために1:1より僅かに発散気味になるように置かれている。ソフトアパーチャは増幅されたビームの周辺がロッド壁に当たってリングパターンが発生しないようビーム径を幾分縮めている。平常運転での増幅段のゲインはAmp 1~3で約10, Amp 4, 5で約4である。筆者らの経験では発振段は当然であるが増幅段についてもランプハウス内の反射鏡の形状と金メッキの施し具合がビームの質にかなり影響することがわかった。これ

Table I. Nonlinear crystals used in the system. IR-OPOA: OPOA pumped by a fundamental light of YAG laser, SH(TH, FH)-OPOA: OPOA pumped by a second (third, fourth)-harmonic light, and SUM: Sun frequency generation.

Nonlinear process	Crystal	Cutting
SHG	KDP	TYPE-I, 41.2° , 2 cm
SHG	KDP	TYPE-II, 58.5° , 2 cm
THG	KDP	TYPE-II, 58.5° , 2 cm
FHG	KDP	TYPE-I, 77° , 0.5 cm
IR-OPOA	LiNbO ₃	TYPE-I, 47° , 3 cm
SH-OPOA	KD*P	TYPE-II, 61° , 4 cm
TH-OPOA	KD*P	TYPE-II, 61° , 4 cm
FH-OPOA	ADP	TYPE-I, 90° , 5 cm
FH-OPOA	KD*P	TYPE-I, 71° , 4 cm
SUM	KDP	TYPE-I, 58.5° , 1 cm
SUM	KDP	TYPE-I, 68° , 1.5 cm
SUM	KDP	TYPE-II, 58.5° , 2 cm

らを改善した結果、現在では出力 100 ~ 150 mJ の均質なパターンが得られている。

高調波発生には KDP 単結晶を用いている。Table 1 に高調波発生、OPOA 及び周波数混合用結晶の規格を示した。2 倍波発生 (SHG, 532 nm) の変換効率は TYPE-I で 30%, TYPE-II で 40% (以後、変換効率は結晶内の変換効率でなく入射波から分離して実際に取出されたエネルギーと入射直前の入射エネルギーとの比とする) である。この差は基本光 (1064 nm) のビーム拡がりに関して TYPE-II の方が位相整合条件がゆるい (5 ~ 6 倍) ことに基いていると思われる。この後、3 倍波 (THG, 355 nm) を効率良く得るには予め基本波の偏光面を 2 倍波用結晶の光学軸に対して約 10° 外側に回転させる (55° になる) と良い。³⁾ これによってこの時の 2 倍波への変換効率は下がるが 3 倍波は逆に増加する。変換効率は 2 倍波との比で約 60% である。4 倍波発生 (FHG, 266 nm) の効率は結晶長に強く依存し、入射光強度が高くなるに従い短い方が有利になる。現在 30% の効率を得ている。

通常の動作で得られている基本光及び 2, 3 4 倍波のエネルギーはそれぞれ 100, 40, 20, 10 mJ である。

3. 光パラメトリック発振・増幅

3.1 赤外パラメトリック発振・増幅 (IR-OPOA)

基本波をポンピング光として LiNbO_3 単結晶 (TYPE-I) を角度同調で用いる方法は Laubereau⁴⁾ らによって最初に行われた。出力は $10 \mu\text{J}$ 、変換効率は 3% であった。 47° カットなので walk off があるがこれを打消すために 2 個の結晶を光学軸に関して対称配置にすると良い。KDP, ADP に比べてダメージのしきい値が低いが逆に有効非線形係数 d_{eff} は 1 桁大きいので基本波を収束させずに通しても十分発振する。輸入品は高価であるが国産品でも十分な出力が得られた。Fig. 2 に結晶の種々の回転角における出

Fig. 2 Spectra of IR-OPOA at various crystal angles.

力のスペクトル波形を示す。測定には分光器 (出力側スリット開放) と赤外ビジコンカメラ及び自作の画像処理装置⁵⁾の組合せを用いた。いずれも 1 ショットの波形である。Fig. 3 に結晶の角度に対する測定された発振波長とスペクトル幅の依存性を示した。出力のビーム断面を見るとポンピングビームを軸とする同心円状にスペクトルが分布している。縮退点に近づくに従い一定の立体角に含まれる波長分布の幅が広がる。このことは Fig. 4 b) に示されるような位相整合条件から求めた発振光のスペクトルの空間分布 (結晶から見たポンピング光軸の廻りの立体角分布) の変化と一致している。増幅後のスペクトル幅は 2 個の結晶間隔に依存している。最初の結晶を出た発振光束のうち透過したポンピング光束と重なる部分が増幅されるので距離をとることによりスペクトルの狭帯化が行われ

Fig. 3 Dependence of wavelengths and spectral widths of IR-OPOA on crystal angles.

る。変換効率（シグナル＋アイドラ）は最大約10%で、縮退点から遠ざかるに従い減少し両端付近（ $1.4\mu\text{m}$ 及び $4.4\mu\text{m}$ ）では5～3%であった。これらの値はポンピング光強度が約 1 G W/cm^2 以上でほぼ飽和している。この領域では入力強度を上げて出力のスペクトルのピーク値は余り上がりず周辺部が増加しスペクトル幅が広がるだけであった。これらの結果は3 cmと5 cmの結晶長について差はなかった。

以上のことからIR-OPOAを光源として利用する際、スペクトル輝度が問題となるような場合にポンピング強度を上げられない、つまり高い出力を取れないことになる。目的に応じて最適な間隔とポンピング強度とが決められる。現在では数mJの出力を得るのに50mJの入力エネルギーを要しているが、これは結晶の端面で

Fig. 4 Solid angle distributions of OPO spectrum around various directions (with respect to the optic axis) of pump wave. Vertical scale is given in angle θ according to $\omega = \pi \theta^2$ (ω : solid angle).

の反射ロス（1面につき14%）によって後側の結晶内でポンピング光強度が50%に下がることを考慮しているためで、反射防止膜を施せば変換率は上がるはずである。

3.2 2倍波及び3倍波による光パラメトリック発振・増幅 (SH-OPOA, TH-OPOA)

2倍波及び3倍波をポンピング光源とするOPOAはそれぞれFig.1のLine 2, Line 3のような光学系で行う。いずれも結晶は $1\mu\text{m}$ より長波長側でKDPより透過率が高いKD*P (TYPE-II, 61° カット, 4 cm, 99%—deuterated) を用いている。これらのOPOAは同調のとれる角度がほぼ重複しているので結晶を共通に使用できる。励起密度を上げるために焦点距離50 cmのシリンダカルレンズを用いて結晶の光学軸とポンピングビームの軸を含む面内に収束さ

Fig. 5 Dependence of wavelengths and spectral widths of SH-OPOA on the rotation angles of KD*P.

せる。2個の結晶は walk off を打消すように光学軸に関して対称的にかつ互いに近接して置かれ、それぞれ発振と増幅を分担する。結晶にダメージが加わらないよう注意しながらポンピング光の焦点をできるだけ増幅段側に近づける。この時のポンピング光の power density は 10 G W/cm^2 以上になる。変換効率は TYPE-I の OPOA に比べて非常に高く、SH-OPOA で最大 25%、TH-OPOA で 35% に達した。スペクトル純度も良く、一定のポンピング光強度のもとでは同調範囲全域でほぼ一定のスペクトル幅を示した (SH-OPOA で約 10 Å, TH-OPOA で約 5 Å)。Fig. 5 と Fig. 6 にこれらの OPOA で得られた発振波長と出力エネルギーの角度依存性を示す。いずれも同調曲線の右上がりの成分が常光線、右下がりが異常光線 (入射光と同じ偏光) として得られる。SH-OPOA について縮退点 (1064 nm) 付近のスペクトル波形を Fig. 7 に示した。Fig. 8 は TH-OPOA における発振段と増幅段の分光写真で、増幅段において広い発振スペクトルの中から狭いスペクトル部分が選

Fig. 6 Dependence of wavelengths and spectral widths of TH-OPOA on the rotation angles of KD*P.

択的に増幅 (ゲインは 10^3 以上) されている様子がわかる。この結果から TYPE-I と TYPE-II の OPOA で光学配置についても出力特性についてもかなり差異があることがわかる。すなわち TYPE-I では 2 個の結晶を近接させて置くと増幅段でのスペクトルに関する選択性が悪いが TYPE-II では極めて良い。つまり TYPE-I では 2 個の結晶のカスケード配置による効果が顕著でない。また TYPE-II では発振のしきい値が高いためポンピングビームを十分しぼり込まねばならないが一度発振した時の変換効率が低い。ちょうど Q-スイッチ発振に良く似ている。KD*P について TYPE-I と TYPE-II の d_{eff} の差は余り無い (結晶の角度に依存する) のでこの相異は別の理由によると思われるが明らかで

Fig. 7 Spectra of SH-OPOA at various rotation angles near the degenerate region. Spectral resolution is limited to about 3 nm.

Fig. 8 Photographs of the spectrum of a) TH-OPO and b) TH-OPOA (fourteen exposures) at different crystal angles.

ない。

SH-OPOA の同調範囲は TH-OPOA のそれに包含されてしまうが、後で述べるように周波数混合によってそれぞれ異なる波長の紫外光が得られるので有用である。

3.3 4倍波による光パラメトリック発振・増幅 (FH-OPOA)

TH-OPOA の同調範囲は 460 ~ 600 nm と 1500 ~ 870 nm (Fig. 6) なのでこれらのギャップをカバーする OPOA として 4 倍波による OPOA (FH-OPOA) を試みた。Fig. 1 の Line 4 にその光学系が示されている。2 個の 90° カット ADP を温度同調で用いる。結晶の温度は 50 ~ 100 °C の範囲で ± 0.02 °C 以内に安定化されている。ADP はメーカーによっては 4 倍波に対する吸収が極めて大きく使用に耐えないものがある。現在は Inrad のものを用いており透過率は比較的良好いが、それでも増幅段での 4 倍波強度が前段の吸収により約 60% に落ちるので増幅利得が小さい。これを改善するためにポンピング光を約 1 : 3 の割合で分割しそれぞれ発振段と増幅段に加えた。両者の power density を独立に調節し最適な増幅が行われるようにした。すなわち増幅段がそれ自身で発振段とならない程度に高い励起密度になるようにした。この時の利得は約 100 であった。(TYPE-II より 1 桁以上小さい)。Fig. 9 に温度の関数として得られた同調曲線、スペクトル幅及び出力エネルギーを示した。IR-OPOA の時と同様に縮退点 (532 nm) 付近ではスペクトル幅は非常に広くピークの位置が定められなかった。これは結晶内の温度分布によるものではなく、ポンピングビームと異なる方向に中心波長と異なる種々の波長の組合せで位相整合が満たされてそれらが分布することに依存しており、この波長分布の幅が縮退点付近で極めて広がるためである。

温度同調方式はオープン熱容量のために波長掃引が遅いので KD*P (TYPE-I, 71° カット, 4 cm, 98%-deuterated) を角度同調で用いることを試みた。ADP より 4 倍波に対する透

Fig. 9 Temperature dependence of wavelengths, spectral widths, and output energies of FH-OPOA in ADP.

過率が高いのでポンピング光を分割する必要はない。Fig. 4 a は発振スペクトルの空間分布を位相整合条件から求めたもので、縮退点に近づくに従いスペクトル分布が広がることがわかる (LiNbO_3 の場合と波長分布が逆になる)。IR-OPOA と同様、2 個の結晶の間隔を広げるとスペクトル幅は狭くなった。同調範囲は $380 \sim 880 \text{ nm}$ で ADP より広いので TH-OPOA の同調範囲のギャップを埋めることができる。しかし出力は低い (0.2 mJ)。

4. 光パラメトリック発振・増幅を利用した紫外光発生

OPOA の高調波または OPOA とそのポンピング光との周波数混合による紫外光の発生を試みた。それらの出力エネルギーと周波数の関係を Fig. 10 に示す。SH-OPOA とそのポンピング光の残りとの和周波として $330 \sim 380 \text{ nm}$ が得られた。TYPE-I と II の KDP を用いて OPOA の異常光線と常光線について各々和周波が得

Fig. 10 Dependence of output energies on the wavelengths in the generation of tunable UV light.

られた。

TH-OPOA とそのポンピング光の残りとの和周波 (TYPE-I) が、また TH-OPOA の高調波 (TYPE-I) が得られ、両者で $252 \sim 300 \text{ nm}$ がカバーされた。

以上の和周波発生あるいは高調波発生の変換効率は約 10% であった。

5. まとめ

可視赤外領域 ($0.4 \sim 4.4 \mu\text{m}$) において従来の報告²⁾に比べて高出力の波長可変レーザーシステムが実現できた。特に $500 \sim 590 \text{ nm}$ と $880 \text{ nm} \sim 4.4 \mu\text{m}$ では 1 mJ ($50 \sim 100 \text{ MW}$) 以上の出力が得られた。OPOA の実験条件と各々の特性を Table II に、紫外光発生も含めて実験で得られたすべての同調曲線を Fig. 11 にまとめた。これらの中で TYPE-II の KD*P を用いた SH-OPOA と TH-OPOA は変換効率も高くスペクトル純度も良いため、紫外光への波長変換が容易に行えた。出力が低い $600 \sim 900 \text{ nm}$ については、現在高圧水素ラマンを 3 倍波で励起し (416 nm)、TYPE-II の OPOA の光源として用いることを試みている。これができればその高調波を取り、現在得られていない $300 \sim 330 \text{ nm}$ を埋めることができるはずである。更に現在行っている 250 nm より短波長側への拡張は光化学反応の研究や、物性研究等に極めて有用である。

Table II. Characteristics of OPOA with various crystals and at different wavelength regions.

Crystal	Pumping wavelength	Tuning range	Output energy (max.)	Conversion efficiency	spectral width	Type of tuning
LiNbO ₃	1064 nm	1.4-4.4 μm	6 mJ	10 %	16-140 cm^{-1}	angle
KD*P	532 nm	860-1400 nm	3 mJ	25 %	10 $\text{\AA}$	angle
KD*P	355 nm	460-600, 1500-870 nm	2 mJ	35 %	5 $\text{\AA}$	angle
ADP	266 nm	430-700 nm	0.4 mJ	10 %	5-20 $\text{\AA}$	temperature
KD*P	266 nm	380-890 nm	0.2 mJ	5 %	5-20 $\text{\AA}$	angle

Fig.11. Various tuning curves obtained in the experiment.

参 考 文 献

- 1) J. A. Giordmaine, R. C. Miller, Phys. Rev. Lett., **14**, (1965) 973.
- 2) For examples,
A. H. Kung, Appl. Phys. Lett., **25** (1974) 653.
G. A. Massey, J. C. Johnson, and R. A. Elliot, IEEE J. Quantum Electron., **QE-12**, (1976) 143.
P. G. Kryukov, Yu. A. Matveets, D. N. Nikogosyan, A. V. Sharkov, E. M. Gordeev, and S. D. Fanc

- Fanchenco, Sov. J. Quantum Electron., **7**, (1977) 127.
- R. Danelyus, G. Dikchyus, V. Kabelka, A. Piskarskas, A. Stabinis, and Ya. Yasevichyute, Sov. J. Quantum Electron., **7** (1977) 1360.
- R. Danelyus, V. Kabelka, A. Piskarskas, and V. Smil'gyavichyus, Sov. J. Quantum Electron., **8** (1978) 398.
- P. G. Kryukov, Yu. A. Matveets, D. N. Nikogosyan, and A. V. Sharkov, Sov. J. Quantum Electron., **8** (1978) 1319.
- V. Kabelka, A. Kutka, A. Piskarskas, V. Smil'gyavichyus, and Ya. Yasevichyute, Sov. J. Quantum Electron., **9** (1979) 1022.
- 3) 'Laser Focus', Oct., 1980, p 32.
- 4) A. Laubereau, L. Greiter, and W. Kaiser, Appl. Phys. Lett., **25** (1974) 87.
- 5) Y. Takagi, M. Sumitani, and K. Yoshihara, Rev. Sci. Instrum., **52** (1981) 1003.