レーザー解説

KTPによる和周波発生

立野 公 男*

(1992年2月19日 受理)

Sum Frequency Generation with KTP

Kimio TATSUNO*

(Received February 19, 1992)

A KTiOPO_4 nonlinear crystal gives 459-nm blue laser by sum frequency generation using an 809-nm diode laser and a 1064-nm Nd doped solid-state laser end pumped by diode laser. The laser is expected to be a compact blue laser sources to increase the storage density of optical disks and to improve the image quality of laser beam printers.

Key Words: Sum Frequency Generation, KTiOPO_4 , Blue Lasers.

1. はじめに

光ディスクの記録密度の向上や、レーザープリンタの印字解像度向上にとって、レーザー光源の短波長化は極めて重要な開発課題である。これまでは、GaAs系の半導体レーザーがその役割を果たしてきたが、600nm近辺に短波長化の限界がある。このため、バンドギャップの広い、ZnSe系のII-VI族半導体レーザーが活発に研究されており、最近、波長約520nmで室温パルス発振の報告¹⁾があった。しかし、この材料は、従来のGaAs系に比べて、例えば、熱伝導係数が小さく、吸収係数が大きいこと、電極のオーミックコンタクトが難しいことなどに起因し、半導体レーザーにした場合、端面の温度が上昇しやすく、高出力での信頼性確保は必ずしも容易でないと予想される。このため、波長変

換技術を応用した短波長光源への期待は無くなっていない。波長変換型の小型光源の筆頭に、半導体レーザーの波長を直接半分に変換する導波路QPM (Quasi-Phase-Match) SHG素子が提案されており、ブルー光が得られることや、直接変調の可能性があることで注目されている^{2,3)}。しかし、位相整合条件を許容する基本波の波長が、半値幅で僅か0.2nm以下であること、半導体レーザーの戻り光ノイズの影響を直接受けることなど、実用化には困難な課題が多い。

一方、半導体レーザーを固体レーザーの励起光に用い、固体レーザーの半分の波長を KTiOPO_4 (以下KTP)によって得る方法が提案されてきた^{4,5)}。この方法では、半導体レーザーのゆらぎの問題を避けうる可能性があり、実用に有望である。しかし、KTPのSHGに対する位相整合条件を満たす波長は、500nm近辺までで

* 日立製作所中央研究所 (〒185 国分寺市東恋ヶ窪1-280)

* Central Research Laboratory, HITACHI Ltd. (1-280, Higashikoigakubo, Kokubunji, Tokyo 185)

あり、短波長化としては不十分である。これに対し、KTPにより、半導体レーザー励起の固体レーザーと半導体レーザーとの和周波発生で、さらに短い459nmのブルー光を発生する方法がある。KTPによる和周波発生の初期の報告例は、筆者の知るかぎりでは、IBMのBaumertら⁶⁾や、W. Riskら⁷⁾、あるいは、AMOCOのD. Anthonら⁸⁾、そして、K. Kato⁹⁾によるものである。本稿では、最初に和周波発生の簡単な復習から始め、位相整合角、位相整合のトレランス、和周波発生の効率、半導体レーザーの適用などを紹介し、最後に、従来のNd:YAGに比べてより高い効率が期待できる、Nd:YVO₄レーザー応用の試みなど、今後の課題を述べる。

2. 和周波発生

非線形光学結晶に電場Eがかかると、分極Pが誘起される。

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

ここに ϵ_0 は真空の誘電率、 χ は非線形感受率と呼ばれる結晶固有の定数(SHGや和周波発生では、非線形光学定数、 $d_{ij} = \chi_{ij}^{(2)}/2$ を用いる)である。電場Eが、角周波数、 ω_1 、 ω_2 の二つのレーザー光(それぞれ、パンプ光、アイドラー光と呼ぶ)からなるとすると

$$E = E_1 e^{i\omega_1 t} + E_2 e^{i\omega_2 t} \quad (2)$$

これを式(1)に代入し、分極の2次の項を取り出すと、

$$P(2\text{次}) = \epsilon_0 \chi_2 \{ E_1^2 e^{i2\omega_1 t} + E_2^2 e^{i2\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} \} \quad (3)$$

となり、第二高調波成分、 $2\omega_1$ 、および、 $2\omega_2$ の項以外に、和周波成分の項、 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 、が現われる。この分極成分が新たに電場を誘起する結果、和周波光が発生する。この時、 k_1 を波数($=2\pi/\lambda$)とすると、運動量保存、

$$k_3 = k_1 + k_2 \quad (4)$$

が成り立つ方向で、効率良く和周波が発生する。

これが和周波発生の位相整合条件である。各波長の屈折率を n_i として式(4)を書き直すと、

$$n_3 \omega_3 = n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 \quad (5)$$

となる。各々の波長(角周波数)に対する屈折率分散は、セルマイヤーの式で与えられているので、式(5)を満足するような、結晶への光の入射角度を計算することができる。式(5)を満たす方向は、基本波の偏光方向によって、二通り存在する。二つの基本波の偏光方向が等しい場合をタイプIの位相整合、異なる場合をタイプIIの位相整合と呼ぶ。位相整合を満たす結晶の方向が定まれば、波長変換効率を決める実効的非線形光学定数を求めることができる。非線形光学定数は、結晶の対称性で縮約された3次元的なテンソルの成分として与えられている。かくして、位相整合条件のもとで、最大の実効的非線形光学定数をあたえる結晶の方位を決めることができる。

3. 位相整合角

以上の手続きをKTPの場合に当てはめると、波長809nmのパンプ光と波長1064nmのアイドラー光から、波長459nmの信号光が得られる方位は、結晶のYZ面、XY面いずれも90°の場合である^{6~9)}。この方位により、タイプIIのNon Critical Phase Matching条件が室温で満足される。すなわち、Fig.1に示すように、1064nmの光のX方向の偏光成分と、Z方向に偏光した809nmのダイレーザー光がカップルして、X方向に偏光した459nmのブルー光が発生する。この方位は、入射角度の変動に対する屈折率の変化が小さいことを意味しており、KTP結晶の実装上有利な性質である。この配置で決まる実効的非線形光学定数は、 $d_{15}(=6.1\text{pm/V})$ 、であり、KTPのSHGに通常用いられる、実効値、 $d_{\text{eff}} \sim d_{24}(=7.6\text{pm/V})$ 、と大差ない値である⁶⁾。次に、実用上重要となる、基本波波長、角度、そして、温度変化に対する位相整合のトレランスについて述べる。

Fig.1 Configuration of KTP and polarization direction of each beam for sum frequency generation.

4. 位相整合のトレランス⁶⁾

KTPによる和周波発生の位相整合トレランスは、IBMのBaumert⁶⁾らによって調べられている。実験では、波長1064nmのNd:YAGレーザーをアイドラー光とし、その励起光であると同時に和周波のパンプ光となる、809nmのダイレーザーを用いて、459nmの和周波光を発生している。実験に使用されたKTPは、水熱成長法によって育成され、XYZ面がカットされた結晶である。研磨面はY軸に垂直な面であり、各光はY軸方向に沿って伝搬する。結晶の長さは、3.5mmである。

Fig.2は、基本波の波長トレランスを調べるために、ダイレーザーの波長を走査した時の、和周波光出力の変化を示したものである⁶⁾。縦軸は、和周波出力 I で正規化してある。出力のピークは、809nmの時である。測定結果は理論曲線、すなわち、

$$I \propto \text{sinc}^2(\Delta k l / 2) \quad (6)$$

$$\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 \quad (7)$$

に良くフィットしている。これは、位相整合が、結晶中で一様に成立している証拠である。ここに Δk は、式(4)より与えられる位相整合不一致量 l は、結晶長である。励起光の波長トレランスは、半値全幅で、3.3nm、となっている。Fig.3は、位相整合の角度トレランスを測定したものである⁶⁾。Z軸、および、X軸の

Fig.2 Generated sum frequency power vs dye laser wavelength with beams propagating down the y axis. The solid line is a fit to the sinc^2 function⁶⁾.

Fig.3 Generated sum frequency power vs external angle of incidence with dye laser wavelength held constant at 809 nm. (a) Rotation on the z axis; (b) rotation on the x axis⁶⁾.

Fig.4 (a) Phase matching wavelength vs temperature; (b) generated sum frequency power vs temperature with dye laser wavelength held constant at 809-nm⁶⁾.

周りの回転に対し、半値全幅で、それぞれ18度、8度であり、二方向ともに広い。これは、KTPによるSHGのNon Critical Phase Matching条件が、一つの方向だけであるのに対し、和周波発生では、二つの方向で成立しているためである。

Fig.4は、位相整合の温度トレランスを示すものである⁶⁾。半値全幅で348°C、結晶長で換算すると、122°C/cmとなり、1064nmのSHGに比べて約5倍広い。また、同じブルー光が得られる、KNbO₃による946nm YAGのSHGの温度トレランス、0.27°Cに比べて、圧倒的に有利である。Fig.4の(a)に示したパンプ光の最適波長の温度

依存性から、Fig.4の(b)に見られる二つのピークを理解することができる。

5. 和周波発生の効率^{6,7)}

和周波発生の効率は、W. P. Riskらによって確かめられている⁶⁾。実験光学系は、Fig.5に示したものである。長さ5mmのNd:YAG結晶と3.5mmのKTP結晶の両方が、809nmのビームウエスト近辺に来るように、両者は近接して置かれており、間には125 μm のマイラーシートが挿まれている。共振器の構成は、非対称で、結晶中でのビームウエストが十分小さくなるように各ミラーの半径が設計されている。入力、および、出力ミラーのコーティングは、それぞれ、[1064nm:HR, 809nm:HT>80%], [1064nm:T=0.1%, 809nm:R>80%, 459nm:T>80%]である。Nd:YAG, KTP結晶は、いずれも1064nmに対してARコートがなされている。以上の配置で実験的に得られた和周波出力がFig.6である。ダイレーザパンプ光出力 P_1 に対し、1064nm出力 P_2 は線形に、459nm光出力 P_3 は二乗で増加している。パンプ光が、275mW (809nm) の場合、それぞれ、 $P_1 = 5.6\text{W}$ (1064nm, 共振器内部), $P_2 = 0.24\text{W}$ (810nm), $P_3 = 0.96\text{mW}$ (459nm) が得られている⁷⁾。

一方、和周波発生パワーの理論値は、BoydとKleinman¹⁰⁾により、次式で与えられている。

$$P_3 = 2 \omega_3^3 d_{15}^2 l^2 P_1 P_2 / b \pi \epsilon_0 c^4 (n_1 + n_2) n_3 \quad (8)$$

ここに、 l は結晶長、 b は、

$$b = 2 \pi \omega_0^2 n / \lambda \quad (9)$$

で与えられるコンフォーカルパラメータであり、結晶長に対して結晶中の基本波のビームウ

Fig.5 Experimental setup for intracavity mixing of 1064-nm laser radiation with an 809-nm pump radiation⁷⁾.

Fig.6 Blue output power obtained by cw pumping. Also shown is a corresponding 1064-nm output power⁷⁾.

エスト径が最適化されていれば、 $l/b \sim 2.8$ となる。式(9)に、KTPの光学定数を代入すれば、

$$P_3 = (3.77) l P_1 P_2 \quad (10)$$

となる。

実験的に得られた出力値は、式(10)で予想される理論値よりも小さい。原因としては、Nd:YAGレーザーの偏光が直線ではなく、ランダムなため和周波発生には出力の半分しか寄与しないこと、また、Nd:YAGレーザーの励起とKTP内での和周波発生を両方とも同時に最適化するための809nmビーム径の設定が困難であることなどが考えられる。

6. 半導体レーザー励起による和周波発生¹¹⁻¹³⁾

以上の例では、基本波にダイレーザーが用いられているが、本来の狙いである、半導体レーザーを適用した場合の報告がある。実験は、Fig.7に示した光学系で行われており、空間、時間コヒーレンスの異なる各種半導体レーザーの和周波特性を比較している。YAGレーザーは、アレー型半導体レーザーで励起され、偏光方向をKTP結晶のa(x)軸方向にとることで、和周波への寄与をブロックし、正味の基本波と、励起光を区別できるように配慮している。マルチモード半導体レーザーを用いた場合のスペクトルを調べたものが、Fig.8である¹¹⁾。半導体

Fig.7 Experimental configuration. One diode laser array is used to pump Nd:YAG and, a second 809-nm source is used for mixing¹¹⁾.

Fig.8 (a) Spectrum of a high-power laser diode array used for mixing. (b) Corresponding spectrum of a blue output¹¹⁾.

Fig.9 Blue output power at 459-nm as a function of 809-nm mixing power provided by a dye laser, a single-mode laser diode, and a broad-area laser diode¹¹⁾.

レーザーの各モードに対応する和周波のモードが観測されている。これは、和周波発生の波長許容幅が、約3.3nmと広いためであり、半導体レーザーの縦モードがマルチであっても和周波発生の効率低下は僅かであると考えられる¹¹⁻¹³⁾。

しかし、Fig.9に示すように、和周波出力を各半導体レーザーで比較してみると、横シングルモード半導体レーザーに比べ、ブロードエリア型半導体レーザーの場合は、約35%低下している。これは、ブロードエリア型半導体レーザーの空間的コヒーレンスが低いので、スポットが十分絞られず、KTP結晶中で二つのビームの重なりが不十分なためと考えられる。実際、ビームウエスト径をビデオカメラで測定した結果、ダイレーザー、シングルモードレーザー、ブロードエリアレーザー、それぞれ、 $\sim 11\mu\text{m}$ 、 $\sim (28 \times 21)\mu\text{m}$ 、 $\sim (47 \times 120)\mu\text{m}$ であり、これらのスポット径と、結晶中で $35\mu\text{m}$ になるよう設計されたYAGレーザーのスポットとのビームの重なり状態で、和周波効率の高低が説明される。最終的に得られた和周波出力は、シングルモード半導体レーザー出力、120mWに対し、50mWである¹¹⁾。

一方、和周波発生には直接変調可能という特徴がある。SHGの場合は、励起用半導体レーザーを変調しても、固体レーザーの追従速度が律速

となって、数10KHzに止まる。これに対し、和周波発生では、和周波に直接寄与する809nmの光を変調することで、直接変調が可能となる。W. Riskらによると、約5nsのパルスが得られており、駆動回路の改善でさらに高い周波数が達成できるとしている¹¹⁾。

和周波発生の効率をさらに向上する方法として、外部共振型がある¹⁴⁾。この方法は、二つの基本波が共にKTP結晶内で定在波が立つように、KTP結晶の両端面に曲率を付けて外部共振器を構成するものである。シングルモード半導体レーザー出力、15mW、YAGレーザー出力、15mW、に対し、4mWの和周波が得られている¹⁴⁾。この方法は、波長変換効率を向上するには有効であるが、半導体レーザーの戻り光によるスペクトルの変動を防ぐために、bulkyなアイソレーターが必要である。このため、装置の小型化がネックとなる。

7. Nd:YVO₄の適用

以上の例では、固体レーザーとして、Nd:YAGが用いられている。YAGレーザーの偏光は、ランダムであるため、和周波に寄与するのは、出力の半分である。これに対し、Nd:YVO₄レーザーは、直線偏光で発振する¹⁵⁾ので、全出力が和周波に寄与する。そのため、二倍近くの効率向上が期待できる。また、YAGに比べて、吸収係数が大きく結晶長を1mm程度に薄くできることや、誘導輻射の断面積が約5倍大きい¹⁵⁾ので励起効率が相当向上する。このため、励起光に対する和周波効率を格段に向上できる可能性がある。Fig.10は励起光に縦横シン

Fig.10 Experimental setup for intracavity mixing of 1064-nm Nd:YVO₄ laser radiation with an 809-nm Ti:Sapphire laser pump radiation¹⁷⁾.

グルモードのチタンサファイアレーザーを用いた和周波発生¹⁷⁾の例である。変換効率は比較的低い¹⁷⁾が、これまでに報告された中では、最も高い和周波出力、4.5mWが得られている。Nd:YVO₄結晶とKTP結晶の配置順序や、共振器の最適化により、さらに高い効率が期待できる。

8. おわりに

以上述べたように、KTPによる和周波発生は、SHGの場合よりも短波長の459nmのブルー光が得られること、位相整合の角度、温度トレランスが際だって大きいことなど優れた特徴があり、しかも、直接変調の可能性もある。今後、Nd:YVO₄レーザーの活用、半導体レーザーの出力向上、集光光学系の最適化、より高い非線形光学定数を持つ結晶の適用などで効率向上を図り、小型短波長光源として実用化の道が拓かれると期待される。

参考文献

- 1) M. A. Haase, J. Qui, J. M. DePuydt, and H. Cheng: Appl. Phys. Lett. **59** (1991) 1272., J. M. DePuydt et. al. 6th International Conference of II-VI Compaund, Okayama(1991).
- 2) E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer and W. J. Kozlovsky: Electron. Lett. **25** (1989) 731.
- 3) C. J. van der Poel, J. D. Bierlein, J. B. Brown and S. Colak: Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 977.
- 4) T. Baer: J. Opt. Soc. Am. B. **3** (1986) 1175.
- 5) M. Oka and S. Kubota: Opt. Lett. **13** (1988) 805.
- 6) J. C. Baumert, F. M. Schellenberg, W. Lenth, W. P. Risk, and G. C. Bjorklund: Appl. Phys. Lett. **51** (1987) 2192.
- 7) W. P. Risk, J. C. Baumert, G. C. Bjorklund, F. M. Schellenberg, and W. Lenth: Appl. Phys. Lett. **52** (1988) 85.
- 8) D. W. Anthon, G. J. Dixon, M. G. Ressler, and T. J. Pier: SPIE Vol. **898**, Miniature Optics and Lasers (1988) 68.
- 9) K. Kato: IEEE J. of Q. E. Vol. **QE-24**, **1** (1988) 3.
- 10) G. D. Boyd and D. A. Kleinman: J. Appl. Phys. **39** (1968) 3597.
- 11) W. P. Risk and W. Lenth: Appl. Phys. Lett. **54** (1989) 789.
- 12) 藤野正志, 小山英樹, 横山精一, 天野壮, 天野覚, 望月孝晏: 第50回応用物理学学会学術講演会予稿集(3) (1989秋季) 27a-ZL-4.
- 13) 山口 哲, 今井浩文: 信学技報, Vol. **90**, OQE90-37, MW90-40 (1990) 47.
- 14) W. P. Risk and W. J. Kozlovsky: Tech. Digest CLEO'91, CWA4, 218.
- 15) 佐々木孝友: OPTRONICS No.12 (1990) 55.
- 16) 渡辺光由, 鈴木 誠: 第38回応用物理学関係連合講演会予稿集(3) (1991春季) 31p-E-15.
- 17) 安藤哲生, 宮井剛, 立野公男: 第50回応用物理学学会学術講演会予稿集(3) (1991秋季) 11p-M-12.