

# Rh:BaTiO<sub>3</sub> および Fe:LiNbO<sub>3</sub> を用いた 800 nm フェムト秒レーザーの 2 光波混合増幅

Two-wave mixing amplification of Rh:BaTiO<sub>3</sub> and Fe:LiNbO<sub>3</sub> by 800 nm femtosecond pulse laser

伊東 大騎 (B4)、モハメド マスドゥル カビル(D3)

Daiki Itoh, Masdul Kabir

## Abstract

We report the experimental results in the two-wave mixing amplification of two different photorefractive crystals, Rh:BaTiO<sub>3</sub> and Fe:LiNbO<sub>3</sub>, using 800 nm femtosecond pulse laser for the first time. Functionality as a photorefractive crystal is also observed for both crystals.

## 1. はじめに

フォトリフラクティブ(PR: Photorefractive)効果は光強度の空間分布によって屈折率変化が形成される現象であり、2 光波混合はそのユニークな現象の 1 つとして知られている。可視連続発振(CW: Continuous Wave)レーザーのように狭いスペクトル線幅を持つ光を使った 2 光波混合増幅(TWMA: Two-Wave Mixing Amplification)は容易に確認できているものの、広帯域な超短パルスレーザーによる増幅作用に関する報告例は少ない。特に 800 nm のフェムト秒レーザーによる増幅技術は未だ研究成果が成されておらず、唯一、Nishioka により 800 nm におけるパルス幅 9 fs、繰り返し周波数 76 MHz のフェムト秒パルスレーザーによる 2 光子吸収を用いた Fe:LiNbO<sub>3</sub> の回折実験が報告されている [1]。Nishioka は最大回折効率 27 % を記録しているが、この程度では著しい TWMA は見込めない。広帯域パルスレーザーでは実効的な格子形成領域が小さくなるため TWMA が困難であるのに加えて、これに適した PR 結晶がなかったというのも、報告

例が少ない理由の一つである。しかし、Huot によって 1.06  $\mu\text{m}$  における繰り返し周波数 10 Hz、パルス幅 10 ns の Nd:YAG パルスレーザーによる Rh:BaTiO<sub>3</sub> の TWMA が確認されており、利得係数 14.2  $\text{cm}^{-1}$  が得られたと報告されている [2]。波長 800 nm 付近でも高い光子吸収量を示すと報告されていることから、有望な PR 結晶として期待できる。

本研究では、Rh:BaTiO<sub>3</sub> および Fe:LiNbO<sub>3</sub> を用い、波長 800 nm におけるフェムト秒パルスレーザーによる 2 光波混合増幅計測を行った。また、800 nm における線形吸収が著しく低い Fe:LiNbO<sub>3</sub> に関しては、周波数チャープをかけて増幅作用の効率化を試みた。TWMA の広帯域性、時間波形計測についても報告する。

## 2. 実験セットアップ

チタンサファイアフェムト秒レーザー（波長 800 nm、パルス幅 30 fs、繰り返し周波数 76 MHz、

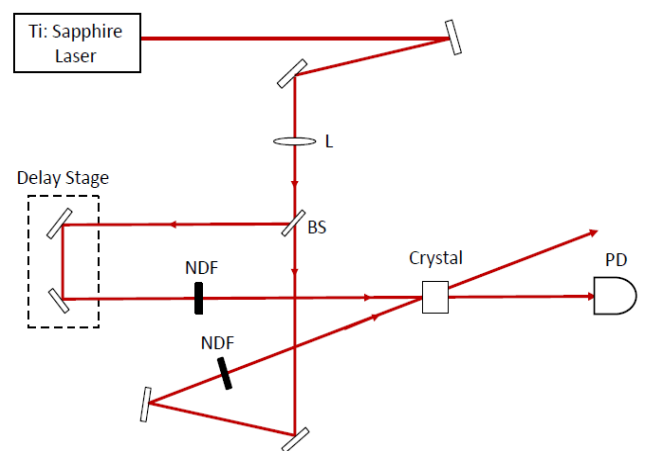


Fig. 1. Experimental setup of TWMA.

MIRA) を用いた Rh:BaTiO<sub>3</sub> および Fe:LiNbO<sub>3</sub> の TWMA 実験セットアップを Fig. 1 に示す。Fe:LiNbO<sub>3</sub> は厚さ 2 mm の AR コートのない結晶を使い、Rh:BaTiO<sub>3</sub> は厚さ 4 mm、Rh ドープ濃度 400 ppm の AR コート付き結晶(800 nm における残留反射率~3%)を用いた。このとき、Fe:LiNbO<sub>3</sub> の線形吸収係数は 0.1 /cm、Rh:BaTiO<sub>3</sub> の線形吸収係数は 1.31 /cm とおよそ 10 倍もの差がある。

Fig. 1 より、800 nm のフェムト秒パルスレーザーはビームスプリッター (BS: Beam Splitter) によってポンプ光( $I_p$ )およびシグナル光( $I_s$ )に分けられ、シグナル光は遅延ステージを通り、結晶の表面にてポンプ光と干渉する。また、シグナル光の光路中に設置した減光(ND: Neutral Density)フィルターで強度比を調整し、結晶透過後のシグナル光の強度を計測する。このとき、Fe:LiNbO<sub>3</sub> は著しく低い線形吸収を示すことから回折格子が十分に形成されるまで時間がかかる。そこで、厚さ 40 mm の石英ガラスをポンプ光の光路中に挿入し周波数チャープさせることで格子形成領域を大きく取り、回折効率の向上を目指した。Fe:LiNbO<sub>3</sub> 結晶は分散量が 210 fs<sup>2</sup>/mm、厚さが 2 mm しかないので結晶透過後のパルス広がりも顕著でないが、Rh:BaTiO<sub>3</sub> 結晶は分散量が 410 fs<sup>2</sup>/mm、厚さが 4mm もあるため、かなりパルス幅が広がる。従って、Rh:BaTiO<sub>3</sub> に関してはビーム径 0.6 mm 以下であればビーム交差領域に対して格子形成領域が十分に満たされている( $W > H$ )。

### 3. 実験結果

#### A. Rh:BaTiO<sub>3</sub> を用いた 2 光波混合増幅

波長 800nm においても 1.3 /cm の高い線形吸収を示す Rh:BaTiO<sub>3</sub> を使用した 2 光波混合増幅計測を行った。まずはシグナル光のみを照射させ光透過強度の標準値を計測した。次にポンプ光をシグナル光と干渉させ、3 分間ほど増幅するシグナル光の強度を

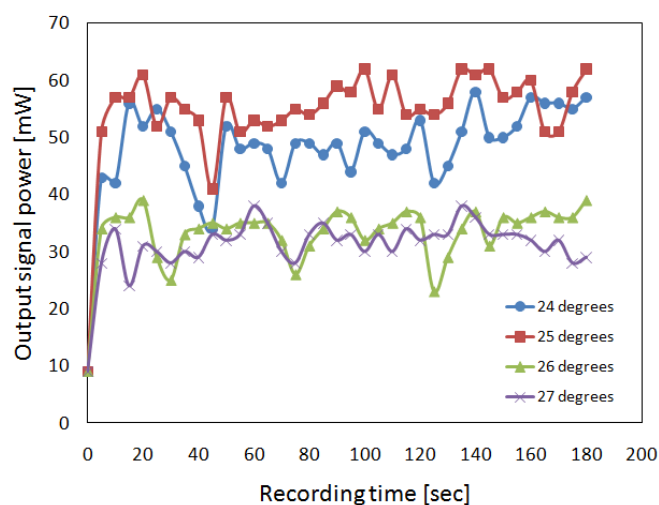


Fig. 2. Time evolution of two-wave mixing for Rh:BaTiO<sub>3</sub> by 800 nm femtosecond pulse laser, where  $W/H = 3$ .

計測した。また、全ての計測において強度比 1:10 を使用した。

はじめに、結晶面でのビーム径を 0.20 mm と設定し、ビーム交差領域  $H$  に対して格子形成領域  $W$  が目一杯おさまるようにした( $W = 0.3$  mm,  $H = 0.1$  mm,  $W/H = 3$ )。入射ピーク強度を 20.9 MW/cm<sup>2</sup>、219.2 MW/cm<sup>2</sup> とした。Fig. 2 にその計測結果を示す。このとき、シグナル光は~20 秒で最大増幅値に到達し、およそ 4~6 の増幅利得が得られた。結晶角度 24°、25°、26°、27°において、それぞれ 6.44、6.88、4.33、4.22 の利得が得られた。最高値に到達した後も信号の変動が確認できるが、これはビームファニングや干渉縞のずれによる現象であると考えられる。また、Fig. 2 より多少の結晶角度差は TWMA に影響を及ぼさないと判定するのが妥当である。

次に、ビーム交差領域に対して格子形成領域が十分でない場合の計測を行い、Fig. 2 と比較する( $W = 0.3$  mm,  $H = 0.55$  mm,  $W/H = 0.54$ )。このときの入射ピーク強度を 21.5 MW/cm<sup>2</sup>、215 MW/cm<sup>2</sup> とした。Fig. 3 にその計測結果を示す。この場合も応答速度は速く、~20 秒で最高増幅値に到達している。しかし、Fig. 2 に比べて形成される体積格子が小さい

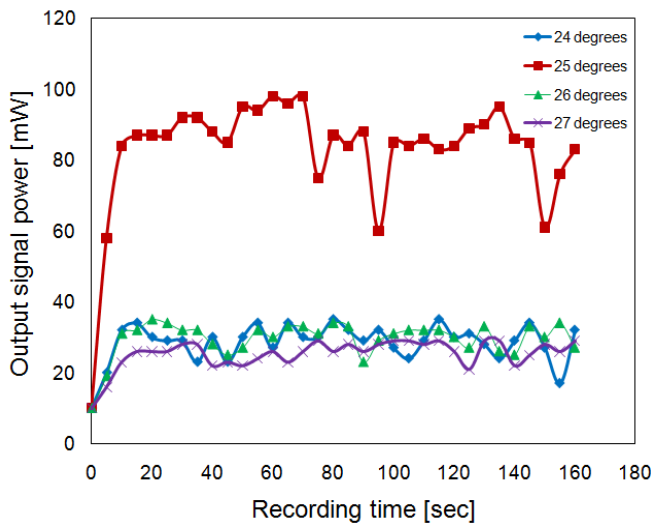


Fig. 3. Time evolution of two-wave mixing for Rh:BaTiO<sub>3</sub> by 800 nm femtosecond pulse laser, where  $W/H=0.54$ .

め、結晶角度 24°、25°、26°、27°における増幅利得は 2.9~3.86 と比較的に低い数値が得られた。従って、TWMA を最適化するには格子形成領域がビーム交差領域よりも大きく取れている必要がある。また、角度 25°において最大増幅利得 11 が得られたが、このような著しく高い増幅は、結晶の不均一性により稀に起きる現象である。

800 nm の CW レーザーを用いた TWMA 実験も行

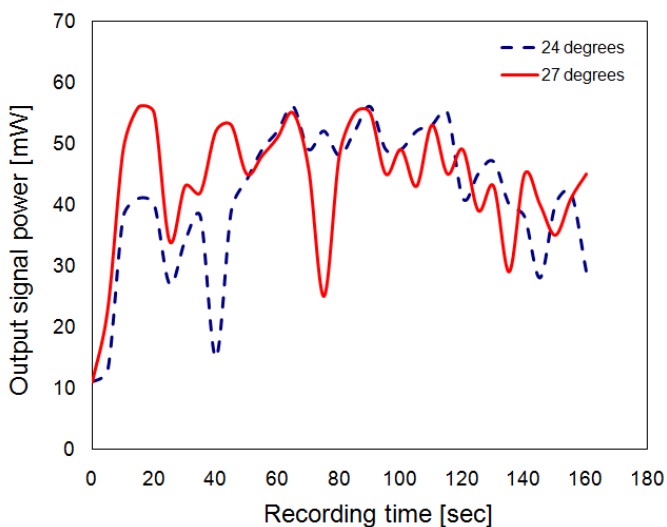


Fig. 4. Time evolution of two-wave mixing for Rh:BaTiO<sub>3</sub> by 800 nm CW laser.

った。このとき、Fig. 3 と同様に  $H=0.55$  mm とし、入射平均強度を  $3 \text{ W/cm}^2$ 、 $30 \text{ W/cm}^2$  とした。CW レーザーの場合は、ビーム交差領域に対して体積格子が容易に目一杯形成される。Fig. 4 にその計測結果を示す。このとき、結晶角度 24°および 27°において増幅利得 5~5.4 が~20 秒で得られた。また、CW レーザーの場合は多少の干渉ずれに対しても正確に反応してしまうため、パルスレーザーの TWMA に比べて激しい変動が確認できる。

最後に、周波数干渉法による周波数位相計測からパルスのスペクトル強度および位相が維持されていることを確認できた。その結果を Fig. 5 に示す。

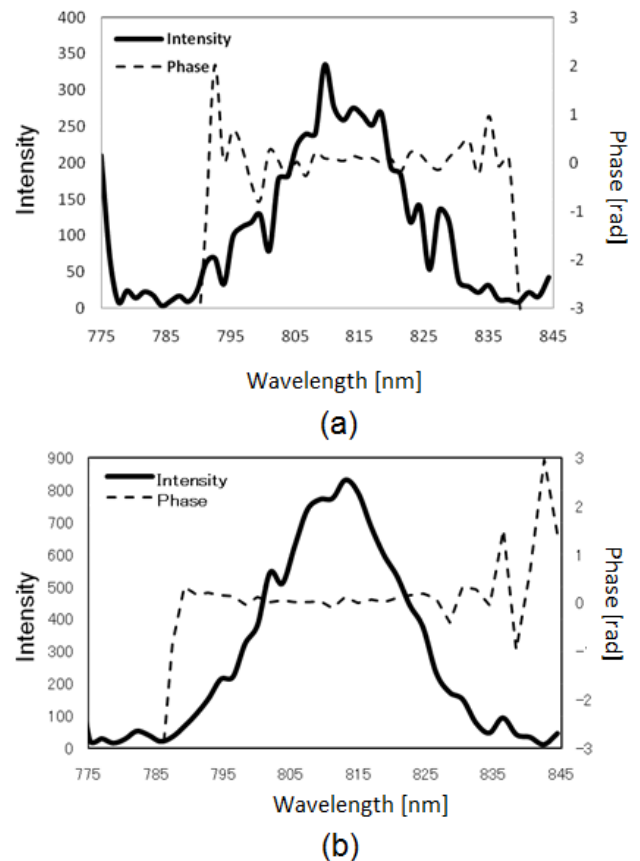


Fig. 5. Spectral interferometry for the phase measurement of (a) input and (b) amplified signal pulse in two-wave mixing amplification.

下記の理論式 [3] より、Fig. 5 で示す TWMA 後のスペクトル幅は  $10 \text{ nm}$  ( $\kappa \sim 4 / \text{cm}$ ,  $A=4.17 \mu\text{m}$ ,  $n_0=2.2$ 、

$\theta_B=5.5^\circ$ )となるが、計測結果では TWM 後もスペクトル幅 30 nm が維持されており、理論値とは異なる結果となった。

$$\Delta\lambda_{1/2} = \frac{2\kappa\Lambda}{\pi} n_0 \Lambda \cos \theta_B, \quad (1)$$

フェムト秒パルスレーザーを用いた PR 体積格子作成で問題となるのは、結晶内でのパルスの実効的な干渉体積が極めて小さい、あるいは体積格子が形成されるまで時間がかかり、結果的に回折効率が著しく低くなってしまうことにあるが、Rh:BaTiO<sub>3</sub> の場合は光子吸収量が十分に大きいため、パルスレーザーでも有効な PR 結晶として使えることが確認できた。パルスレーザーでも、CW レーザーと同様に 20 秒程度で最大増幅値が得られた。ただし製作が容易ではなく、温度管理も不可欠であることから取り扱いには十分な注意が必要である。

## B. Fe:LiNbO<sub>3</sub> を用いた 2 光波混合増幅

Rh:BaTiO<sub>3</sub> は PR 結晶として有効的であることが確認できた。次には、0.11 /cm と低い線形吸収を示す Fe:LiNbO<sub>3</sub> を用いて同様の実験を行った。全ての計測において強度比 1:20 およびビーム径 0.30 mm を用いた。

まずは 800 nm における CW レーザーを使った TWMA 実験を行った。入射平均強度を 13 W/cm<sup>2</sup>、255 W/cm<sup>2</sup> とした。Fig. 6 にその計測結果を示す。このとき、最大利得 6 が 27 分後に観測できた。次にパルスレーザーによる TWMA 実験結果を Fig. 7 に示す。Fe:LiNbO<sub>3</sub> は Rh:BaTiO<sub>3</sub> に比べて光子吸収量が圧倒的に少ないため、パルスレーザーに関しては応答速度が著しく遅くなる。そこでポンプ光を周波数チャープさせ回折体積格子を大きくした状態で計測を行った。入射ピーク強度を 6 MW/cm<sup>2</sup>、118 MW/cm<sup>2</sup> として、パルス幅を 30 fs、137 fs とした。このとき、 $W/H = 0.9$  と体積格子は十分に形成されるのにも関わらず、数十分観測しても最大利得 2.5

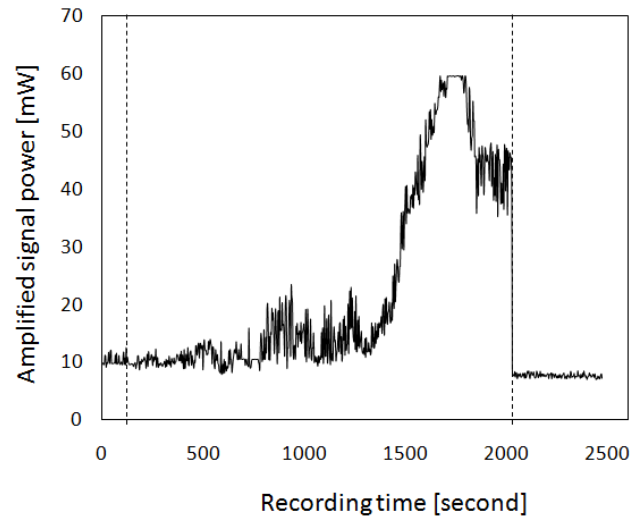


Fig. 6. Time evolution of two-wave mixing for Fe:LiNbO<sub>3</sub> by 800 nm CW laser.

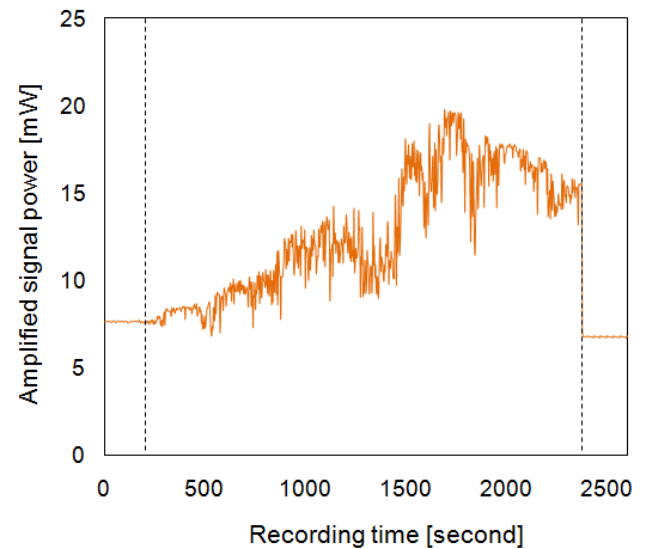


Fig. 7. Time evolution of two-wave mixing for Fe:LiNbO<sub>3</sub> by 800 nm femtosecond pulse laser, where  $W/H = 0.9$ .

しか観測できなかった。従って、Fe:LiNbO<sub>3</sub> では Rh:BaTiO<sub>3</sub> なみの増幅が得られるのに数時間かかる可能性があり、著しい向上は期待できない。

## 4. まとめ

Rh:BaTiO<sub>3</sub> は近赤外波長で高い線形吸収を示すことから数十秒以内に高い TWMA を示し、PR 結晶

としての性質は抜群であることが確認できた。また、ビーム径を大きく取り周波数チャープさせることで、さらに高い TWMA を示すと考えられる。一方、Fe:LiNbO<sub>3</sub> を使った TWMA は最大増幅値に到達するまで長時間かかるため、劇的な向上は望めない。

## References

- [1] Hajime Nishioka, Keisuke Hayasaka, Shuji Ohta, Hitoshi Tomita, and Kenichi Ueda: *Opt. Expr.* **15** (2007) 4830
- [2] N. Huot, J.M.C. Jonathan, G. Roosen, D. Rytz: *Opt. Lett.* **22** (1997) 976
- [3] P. Yeh: *Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics*, WILEY (1993)