

学術論文

繰り返し照射下におけるレーザ吸収を考慮した 第二高調波発生と出力パルスひずみの解析

野村和史* 大村悦二* 宮本勇*

Analysis of Second Harmonic Generation and Output Pulse Distortion
Considering Laser Absorption with Repetitive Irradiation

NOMURA Kazufumi, OHMURA Etsuji and MIYAMOTO Isamu

*大阪大学大学院(〒565-0871 吹田市山田丘2-1)
nomura@mapse.eng.osaka-u.ac.jp

(原稿受付 2004年9月15日)

Shorter pulse duration and higher power of solid-state lasers have accelerated the development of frequency conversion technique using nonlinear optical crystals for laser precision microfabrification. Previous theoretical studies concerning frequency conversion supposed one pulse irradiation, accordingly the influence of temperature change of crystal induced by laser absorption is not considered, though practical frequency conversions are used with repetitive irradiation. Therefore researches and developments of harmonic generation with repetitive irradiation have been approached experimentally or empirically. In this study, the second harmonic generation considering laser absorption was analyzed theoretically. Output second harmonic pulse shape influenced by repetitive irradiation was evaluated supposing input pulse has Gaussian distribution temporally and spatially. It was quantitatively revealed that a beam profile of output second harmonic pulse especially generated by high input intensity is distorted temporally and spatially even during extremely short time-range of one-pulse. Our analysis suggests a possibility that this pulse distortion has an influence on processing accuracy.

Key words: second harmonic generation, nonlinear optical crystal, laser absorption, pulse distortion, beam profile

1. 緒 言

非線形光学結晶を用いた波長変換技術は、レーザ精密細加工、特に全固体レーザの応用に重要な技術である。波長変換は繰り返し照射下で用いられることが多いが、繰り返し照射下での高調波発生に関する従来の研究・開発は、実験的・経験的立場がとられており、理論的な研究は1パルス照射を対象としたものしかみられない^{1,2)}。そもそも、波長変換を実現するには位相整合技術が不可欠であり²⁾、これにより波長変換効率は最大値を得ることができるが、この位相整合は非線形光学結晶の温度に敏感で、結晶に温度変化があると変換効率が低下してしまう^{5,6)}。繰り返し照射下では、レーザ吸収の影響があるため結晶の温度変動が生じる。よってこれが波長変換に与える影響を解析するには、1パルス照射を想定した従来の理論解析では不可能である。

上記のような研究背景、問題に対し、本研究では、繰り返し照射を想定し、レーザ吸収による熱の影響を積極的に取り入れた理論的解析を行った。従来の理論的研究手法に用いられる複素振幅に関する微分方程式は^{2,7)}、レーザ光吸収を考慮していない。そこで著者らはこれまでに、もっとも基本的な波長変換である第二高調波発生(SHG)を扱い、レーザ吸収を考慮した高調波発生を解く方程式を新たに導き、これと熱伝導方程式とを連成した解析モデルを構築した。これにより、入射基本波として一様強度ビームを想定した一次元解析⁸⁾、ガウシアンビームを想定した二次元解

析を行い⁹⁾、また非線形光学結晶として、KDP(KH_2PO_4)結晶¹⁰⁾、KTP(KTiOPO_4)結晶¹¹⁾を想定することで、繰り返し照射における結晶の温度上昇に伴う変換効率の低下と変動、ビームプロファイルの乱れなどについて、理論的に明らかにした。

これまでの我々の研究では、入射基本波として時間的強度変化が一定である矩形波パルスを想定してきた。本稿では、近年の短パルス化を受け、また短パルスほどその波形が重要になる¹²⁾ということを考慮し、入射パルスとして、空間的な強度分布に加え、時間的にも強度分布したパルス波形を想定した。これにより、繰り返し照射下でのレーザ吸収による変換効率の変動や、出射パルスのパルス時間オーダーでのビームプロファイル変化などの評価を中心に、第二高調波発生に関する諸現象を定量的に予測、解明した。

2. 解 析 方 法

本研究では、非線形光学結晶のレーザ吸収を考慮した第二高調波発生(SHG)と、熱伝導方程式による結晶の温度変化とを連成的に取り扱うことで、繰り返し照射下でのSHGを解析する。

2.1 レーザ吸収を考慮した SHG の支配方程式⁸⁾

まず、レーザ吸収を考慮した SHG を解く手法を次に示す。一般に、 z 方向に進む電場 E はレーザ吸収を考慮すると

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \{ A(z) p \exp[-\alpha z] \exp[i[\omega t - kz]] + \text{C.C.} \} \quad (1)$$

で表される。 i は虚数単位、C.C. は複素共役項を表す。 A は

複素振幅, ω は角周波数, k は波数, 2α は吸収係数である。 p は分極方向を表す単位ベクトルである。ところで、非線形媒質中の波动方程式は、 E, P_{NL} をそれぞれ電場と非線形分極とし、光波が z 軸に伝播するすれば、Maxwell 方程式より、一般に次式で表される。

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \mu \epsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \quad (2)$$

μ, ϵ は媒質の透磁率と誘電率である。また、非線形分極 P_{NL} は非線形電気感受率 $\chi^{(2)}$ を用いて二次の項までを適用すると、次式が成り立つ。

$$P_{NL} = \chi^{(2)} E E \quad (3)$$

ここに、SHG における非線形媒質中の電場 E は、角周波数 ω の基本波と 2ω の第二高調波による重ね合わせで表すことができる。

$$E(z, t) = E_1 + E_2 \quad (4)$$

添字 1,2 はそれぞれ基本波、第二高調波に対応する。式(3)の下で式(4)を式(2)に代入すると、以下の複素振幅に関する連立微分方程式が導かれる。

$$\begin{cases} \frac{dA_1(z)}{dz} = -i\eta_1 \omega d_{eff} A_1(z) A_2(z) \exp[-\alpha_2 z] \exp[-i\Delta kz] \\ \frac{dA_2(z)}{dz} = -i\eta_2 \omega d_{eff} A_1^2(z) \exp[(\alpha_2 - 2\alpha_1)z] \exp[i\Delta kz] \end{cases} \quad (5)$$

d_{eff} は実効非線形定数(結晶物性値), η_q は媒質のインピーダンスである。 Δk は、 c_0 を光速、 n_q を屈折率として

$$\Delta k = 2\omega(n_2 - n_1)/c_0 \quad (6)$$

であり、位相整合の度合いを表すパラメータである。 $\Delta k = 0$ のとき、すなわち、基本波と第二高調波に対する結晶の屈折率 n_1, n_2 が一致するとき位相整合状態で、これが満たされると変換効率は最大となる。

ある位置 z での強度 $I(z)$ は、式(1)の電場の定義を考慮すると、次式で表される。

$$I(z) = |A(z)|^2 \exp[-2\alpha z]/2\eta \quad (7)$$

$z = 0$ を結晶の入射面とすると、入射面では基本波の強度し

か存在しないということが初期条件となる。これより式(5)を $A_1(z), A_2(z)$ について解くことができ、任意の位置 z での基本波、第二高調波の強度が求められる。本解析ではこれを解くのに、ルンゲ・クッタ法を適用した。

なお、従来の SHG 解析には、式(5)のような複素振幅に関する方程式がよく用いられるが、それらは吸収係数項がない²⁷⁾。我々の研究では、第二高調波の誘起だけでなくレーザ吸収をも考えるため、吸収係数項を含む式(5)を新たに導出している。

2.2 非線形光学結晶における位相整合²⁾

通常、波長の異なる光に対する屈折率は、波長分散のため屈折率を一致させる、すなわち位相整合させることができない。しかし非線形光学結晶のような異方性結晶では、複屈折現象を利用して異なる波長の屈折率を一致させることができる。

SHG のために、Type II 位相整合を想定すると、基本波と第二高調波の屈折率は次のように表される。

$$\begin{cases} n_1 = \frac{1}{2} \left(n_z^{(\omega)} + \sqrt{(n_x^{(\omega)} n_y^{(\omega)})^2 / (n_x^{(\omega)} \cos \theta)^2 + (n_y^{(\omega)} \sin \theta)^2} \right) \\ n_2 = \sqrt{(n_x^{(2\omega)} n_y^{(2\omega)})^2 / (n_x^{(2\omega)} \cos \theta)^2 + (n_y^{(2\omega)} \sin \theta)^2} \end{cases} \quad (8)$$

ここで n_x, n_y, n_z は、結晶の波長 λ 、温度 T に依存する主屈折率であり^{13,14)}、肩字(ω)は基本波の波長を、(2ω)は第二高調波の波長をそれぞれ対応させている。また、 θ はレーザの入射角である。よって、屈折率 n_1, n_2 は結晶温度とレーザ入射角に依存することになる。ある温度 T に対して入射角 θ を調整して $n_1 = n_2$ が成り立つとき位相整合状態であり、そのときの温度、入射角はそれぞれ位相整合温度 T_{pm} 、位相整合角 θ_{pm} となる。

2.3 繰り返し照射下での高調波解析手法

次に、このレーザ吸収の影響を考慮した電場と温度場の連成解析モデルを Fig. 1 に示す。非線形光学結晶に円柱座標系 (r, z) をあてはめ、入射面($z = 0$)に角周波数 ω の基本波パルスが垂直に入射するものとする。入射基本波は平面

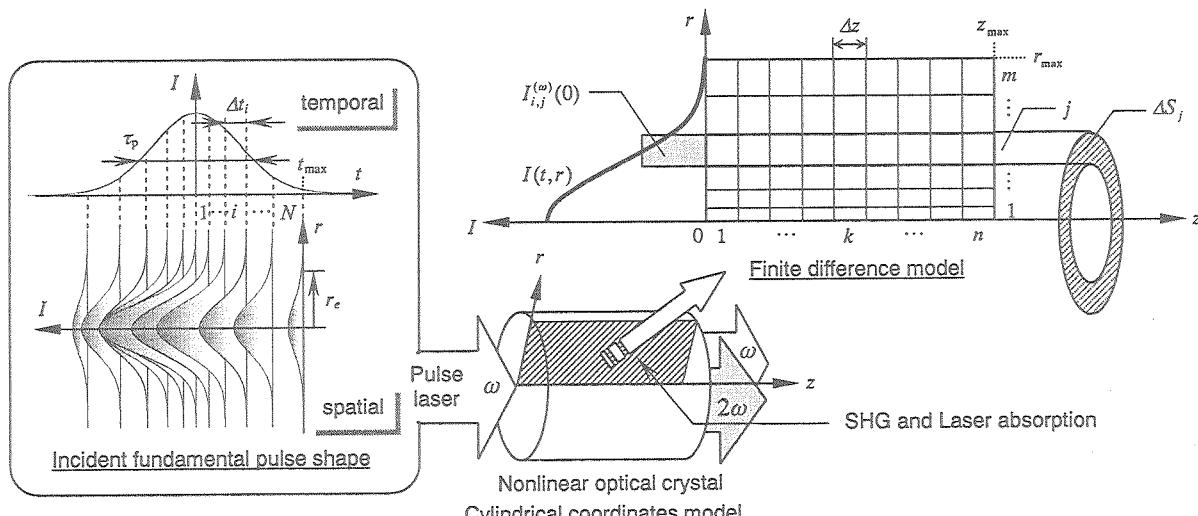


Fig. 1 Schematic of analysis model

波で、時間的な強度変化、空間的な強度分布を持つパルスを想定した。ここに、時間的にも空間的(極座標系)にもガウシアン分布であるパルスの強度 $I(r, t)$ は、パルスエネルギーを E_p 、FWHMで定義したパルス幅を τ_p 、 $1/e^2$ 半径を r_e としたとき

$$I(r, t) = \frac{4E_p}{\pi r_e^2 \tau_p} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp \left[-4 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_p^2} - 2 \frac{r^2}{r_e^2} \right] \quad (9)$$

で表すことができる。式(9)は連続関数であるが、計算に用いる場合は離散化した強度が必要である。そこで、パルスの時間・空間とともにガウス分布の中心で密になるように、時間軸 t 、空間軸 r を次のように対数分割した。

$$\begin{cases} t_i = t_{\max} \left\{ 1 - \frac{\ln(N+1-i)}{\ln(N+1)} \right\}, & t_{-i} = -t_i \quad (i = 0, 1, \dots, N) \\ \Delta t_i = t_i - t_{i-1}, \quad \Delta t_{-i} = \Delta t_i \quad (i = 1, 2, \dots, N) \end{cases} \quad (10)$$

$$\begin{cases} r_j = r_{\max} \left\{ 1 - \frac{\ln(m+1-j)}{\ln(m+1)} \right\} & (j = 0, 1, \dots, m) \\ \Delta S_j = \pi (r_j^2 - r_{j-1}^2) & (j = 1, 2, \dots, m) \end{cases} \quad (11)$$

ここで t_{\max} はパルスの最大時間、 Δt_i は時間刻み幅、 r_{\max} は結晶半径方向最大値、 ΔS_j は要素 j に対応する断面積である。

これを用いて、入射基本波の離散化強度 $I_{i,j}^{(\omega)}(0)$ が

$$I_{i,j}^{(\omega)}(0) = \left(\int_{t_{i-1}}^{t_i} \int_{r_{j-1}}^{r_j} I(r, t) 2\pi r dr dt \right) / \Delta t_i \Delta S_j \quad (12)$$

で与えられる。この離散化強度を初期値として式(5)を(時間分割数 $2N \times$ 空間分割数 m)だけ解くと、任意の位置 z での第二高調波パルスの時間的・空間的な強度 $I_2(t, r, z)$ が求められる。このとき変換効率は、長さ z における第二高調波のエネルギー $E_2(z)$ と入射基本波エネルギー $E_1(0)$ (= E_p)との比で与えられ、

$$\frac{E_2(z)}{E_1(0)} = \left(\int_{-t_{\max}}^{t_{\max}} \int_0^{r_{\max}} I_2(r, z, t) 2\pi r dr dt \right) / E_p \quad (13)$$

で表される。このとき入射基本波パルスの強度分布式(9)に対して、結晶から出射する第二高調波は、出射面を $z = z_{\max}$ とおくと、 $I_2(r, z_{\max}, t)$ で表される。

また、レーザ吸収があるため、基本波と第二高調波の強度の和は結晶内を光が伝播するにつれ減少していく。この結晶長さ z 方向に生じる強度勾配が内部発熱になる。吸収された熱の拡散時間に比べてパルス幅は十分に小さいので、1 パルス中は結晶の温度変化がないとする、パルス中の内部発熱 w は、基本波の強度を I_1 として、

$$w(r, z) = -\frac{1}{2t_{\max}} \int_{-t_{\max}}^{t_{\max}} \frac{d}{dz} [I_1(r, z, t) + I_2(r, z, t)] dt \quad (14)$$

となる。よって1パルス照射による内部発熱量が結晶すべての格子において求まることになる。これを用いてパルス照射直後の結晶温度分布が

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(K r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K \frac{\partial T}{\partial z} \right) + w \quad (15)$$

により与えられる。 ρ と c は結晶の密度と比熱、 K は熱伝導率である。なお、熱的境界条件は室温における外界への

Table 1 Physical properties of KTP

Absorption coefficient	
$2\alpha_1$ (fundamental, 1064 nm)	0.5 1/m
$2\alpha_2$ (second harmonic, 562 nm)	4.0 1/m
Density ρ	2.945×10^3 kg/m ³
Specific heat c (at 293 K)	6.85×10^2 J/kgK
Thermal conductivity	
K_x (r direction)	3.064 W/mK
K_z (z direction)	2.173 W/mK
Effective nonlinearity d_{eff}	2.15×10^{-23} F/V

Table 2 Analysis condition

Laser: Nd:YAG ($\lambda = 1064$ nm)	Crystal: KTP		
Pulse Energy E_p	2 mJ	Length z_{\max}	10 mm
$1/e^2$ radius r_e	1.5 mm	Radius r_{\max}	3 mm
Repetition rate f_p	500 Hz		
Pulse duration τ_p	15 ps ~ 1 ns		
Phase matching temperature T_{pm}	293 K		
Initial temperature T_0	293 K		
Phase matching angle θ_{pm}	24.6134 deg		

熱放射を想定した。パルスとその次のパルスの間は、レーザ吸収がないので、式(15)における w は零とする。

次のパルスが照射されるときは、このパルスが照射される直前に得られた各小領域の温度を用いて、式(8)によって各領域の屈折率 n_1, n_2 を計算する。このとき、温度に依存する屈折率は変化しており、この状態で次のパルスに対して式(5)を解く。これら一連の手順を、繰り返し周波数 f_p でもって照射時間中繰り返す。

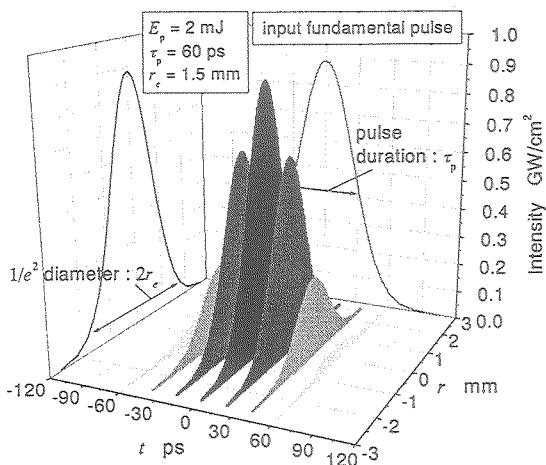
以上から、繰り返し照射下でレーザ吸収によって時々刻々と変化する結晶温度と、それに伴う位相不整合状態での第二高調波発生を同時に解析することができる。

入射基本波は Nd:YAG レーザ(波長 1064 nm)、非線形光学結晶は、KTP(KTiOPO₄)を想定した。KTP の物性値を Table 1 に示す^{2,15,16}。また解析条件を Table 2 に示す。照射開始時刻では位相整合条件($n_1 = n_2$)を満たしているものとした。いま投入エネルギーを等しくするためパルスエネルギーを一定とし、パルス幅を可変としたので、パルス幅が短いほどピーク強度(瞬時値)が高い。境界条件に関しては、雰囲気温度 $T_\infty = 293$ K、放射率 $\epsilon = 0.8$ とした。

3. 解析結果と考察

3.1 位相整合時 1 パルス照射

本研究で想定する入射基本波は、時間的にも空間的にもガウス分布したパルスである。パルス幅 60 ps、その他の条件を Table 2 に従ったときの入射パルスを Fig. 2 に示す。パルス入射開始直後は、全体的に低い強度のビームプロファイルが結晶に入射し、パルスが伝播するにしたがってビームの強度が増していく。パルス中心($t = 0$)でもっとも強度が高くなり、その後強度が減衰していく。このように入射

Fig. 2 Input pulse shape ($E_p = 2 \text{ mJ}$, $\tau_p = 60 \text{ ps}$, $r_e = 1.5 \text{ mm}$)

強度は、図の場合およそ 240 ps というごく短い時間で変化する。

一方 Fig. 3 は、単一強度 I_0 を想定し、位相整合状態の結晶へ 1 パルス照射したときの局所的な変換効率、つまり入射強度 I_0 に対する第二高調波 $I_2(z)$ の割合を示したものである。すでに知られているように、入射強度、結晶長が大きいほど高効率となることがわかる^{2,3)}。

この変換効率変化について、 $I_0 = 0.4 \text{ GW/cm}^2$ のときを強度で書き表すと Fig. 4 が得られる。ここに、基本波と第二高調波の合計強度と、さらにレーザ吸収を考慮した場合と考慮しない場合を示した。第二高調波の強度変化は、Fig. 3 の変換効率変化と等価である。レーザ吸収によって、若干変換効率は低下している。吸収の影響は、結晶長 z が長ければ長いほど効果が大きい。本条件下で吸収を考慮した場合、結晶出射面 ($z = 10 \text{ mm}$)において、変換効率が 99.46 % から 96.54 % に落ちている。合計強度についてであるが、レーザ吸収を考えなかった場合は、結晶内でのエネルギーのやり取りは、基本波と第二高調波の変換のみであるため、合計強度は一切変化しない。これに対し、レーザ吸収があると、合計強度は徐々に減少する。減少の仕方は、結晶における吸収係数の違いにより定まる。KTP の場合は、第二高調波に対する吸収係数が基本波のそれに対して 8 倍も大きい³⁾。よって、変換効率が高いほど吸収が多くなる。合計強度の減り方に、このことが顕著に現れていることがわかる。

このような合計強度の減衰は、Fig. 5 に示す内部発熱に大きく関与する。内部発熱 w は、合計強度の減衰が激しいほど大きい。先程も述べたように、KTP では第二高調波に対する吸収係数が基本波のそれに対して大きい。言い換えれば、第二高調波が比較的多く誘起している部分 (Fig. 4 参照)、つまり変換効率の高い部分で、内部発熱量が大きくなるということである。Fig. 5 ではこのことが示されている。

想定したパルス (Fig. 2) は、单一強度 I_0 が時空間 (r, t) にまたがる集まりであるから、上記の SHG と吸収の結果、結晶端からの出射パルスとして Fig. 6 が得られ、式(13)で表される全体としての変換効率が 85.86 % となる。また、吸

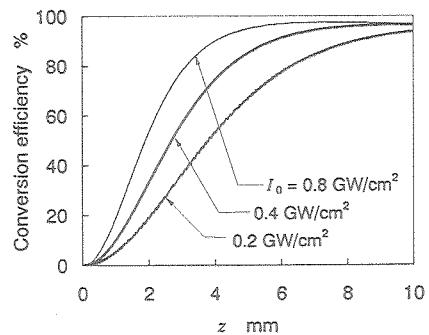
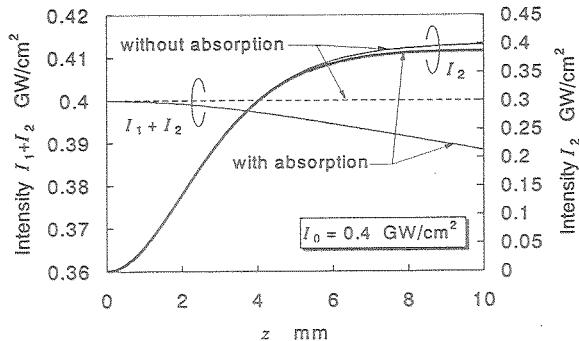
Fig. 3 Dependence of conversion efficiency distribution in crystal on input fundamental intensity I_0 by one pulse irradiation under phase matching condition

Fig. 4 Comparison of intensity distribution in crystal with and without laser absorption by one pulse irradiation under phase matching condition

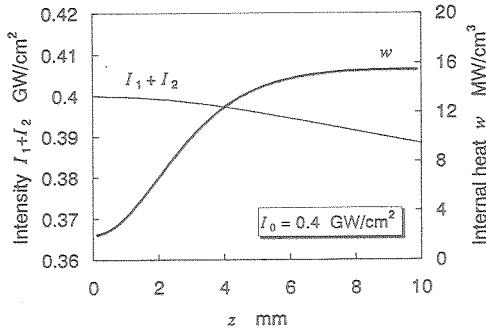


Fig. 5 Relationship of attenuation of total intensity and internal heat distribution in crystal by one pulse irradiation under phase matching condition

取されたエネルギーは 2.48 % であった。

レーザ吸収による内部発熱の結果、1 パルス照射直後は Fig. 7 に示す温度分布が得られる。入射強度が高く、結晶長が長い部分で変換効率がよく、その分内部発熱量が大きい、ということを反映した温度分布となっている。本解析条件下における 1 パルス照射では、結晶の温度上昇は局所的には約 10^{-4} K のオーダーであり、結晶全体では平均温度 T_{ave} が $9 \times 10^{-5} \text{ K}$ しか上がりらず、熱の影響はほぼないと言ってよい。しかし、以下に示す繰り返し照射を想定した解析では、この熱の影響が蓄積し変換効率に影響を及ぼすことになる。

3.2 繰り返し照射下での結晶温度と変換効率変化

前項の結果は位相整合時、つまり基本波と第二高調波の屈折率 n_1, n_2 に差 Δn がない場合に得られたものである。前

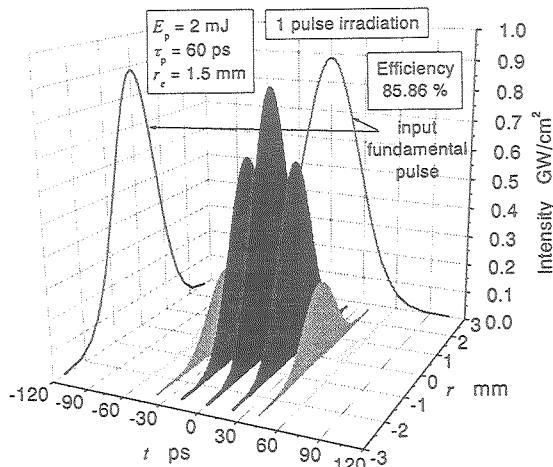


Fig. 6 Output second harmonic pulse obtained by one pulse irradiation under phase matching condition ($\tau_p = 60$ ps)

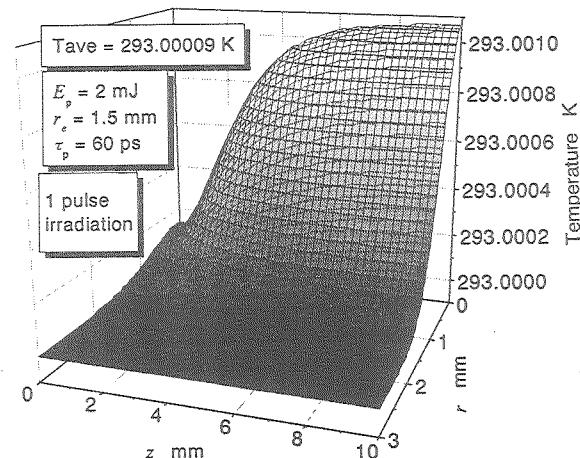


Fig. 7 Temperature distribution in crystal obtained by one pulse irradiation under phase matching condition ($\tau_p = 60$ ps)

述したように、屈折率は結晶温度に依存する。Fig. 8 は、 293 K で位相整合させた場合の、基本波、第二高調波の屈折率の温度依存性を示す。結晶温度が位相整合温度から遠のくにつれ屈折率差 Δn が大きくなり、位相不整合状態となることがわかる。

繰り返し照射下では、各パルス照射で生じる熱の蓄積により、結晶温度が徐々に上昇していく。この結晶の平均温度変化をパルス幅 $15\text{ ps} \sim 1\text{ ns}$ をパラメータとして Fig. 9 に示す。この温度変化により Fig. 8 に示した位相不整合状態が生じる。このような温度変化のもとでの変換効率変化を Fig. 10 に示す。1 パルス照射では、パルス幅の短い方が入射強度が高いため、変換効率が高い。しかし、照射を続けると、結晶の温度変化により位相整合が満たされなくなり、変換効率が低下、変動するのがわかる。一方で、パルス幅の長い低入射強度になればなるほど、初期では変換効率が低いが、照射時間に対して効率が安定する傾向にある。

この変動の仕方は以下の理由による。KTP の場合は変換効率が低いと結晶に吸収されるエネルギーが少なく、このため温度上昇量が少なくなる。Fig. 11 に吸収されるエネル

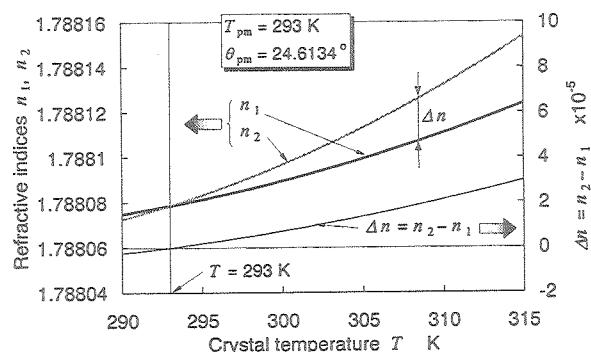


Fig. 8 Temperature dependence of refractive indices, n_1 and n_2 , and of the difference between them in KTP

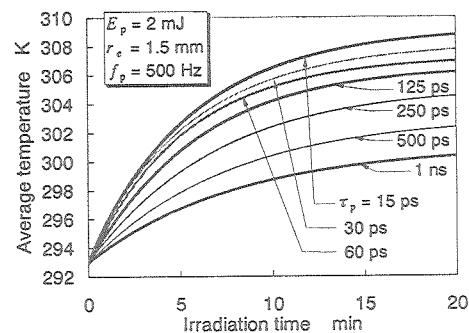


Fig. 9 Time variation of average temperature of crystal with repetitive irradiation

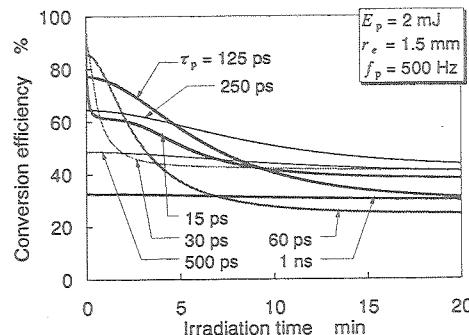


Fig. 10 Time variation of conversion efficiency with repetitive irradiation

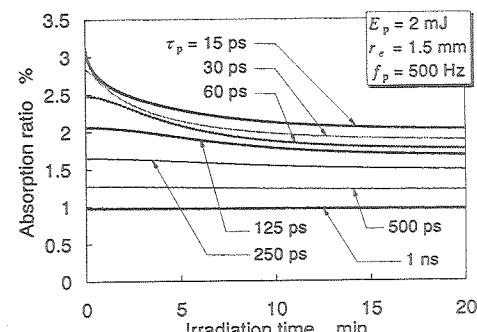


Fig. 11 Time variation of absorption ratio with repetitive irradiation

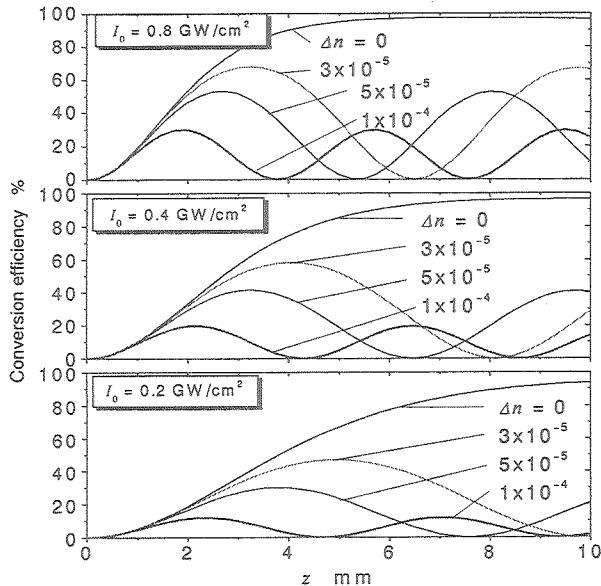


Fig. 12 Dependence of conversion efficiency distribution in crystal on input fundamental intensity I_0 and the difference of refractive indices Δn

ギーの時間変化を示すが、これが Fig. 9 のような温度変化になる原因である。このように温度変化が小さい分、生じる屈折率差が小さい (Fig. 8) ので、変換効率が比較的安定するのである。また、同程度の屈折率差に対する強度変動の敏感性の違いが挙げられる。Fig. 12 は、任意に、かつ一様に屈折率差を与えた結晶に、単一強度 I_0 を 1 パルス照射することにより、結晶内部変換効率の屈折率差依存性を示したものである。屈折率差 $\Delta n = 0$ のときは Fig. 3 に対応する。同図は、生じる屈折率差が同じでも、入射強度の高い方、結晶長の長い方が、変換効率の変動が激しいことを示している。パルス幅を短く想定すると、入射強度が大きくなる分、生じる屈折率差に対して変動が大きくなるのである。以上のような理由から、本解析条件では、照射 6 分以降でパルス幅 250 ps のときがもっとも効率が高くなった。しかし、安定性という面ではパルス幅が長ければ長いほど良くなる。

また、Fig. 13 にパルス幅 60 ps、照射時間 10 分のときの結晶内温度分布を示す。結晶平均温度 T_{ave} は 305.17 K である。1 パルス照射による結晶表面側での温度上昇はほとんど見られない (Fig. 7) にもかかわらず、繰り返し照射下ではパルス間での熱伝導効果により結晶表面側でも温度が上昇している。また結晶長さ方向では、中心部で高い温度を有するようになるが、これは入射面と出射面への熱放射の効果だけではない。Fig. 14 は、照射時間 10 分に見られる結晶内部での第二高調波の強度分布である。ここでは、強度分布 $I_2(r, z, t)$ の 1 パルス内の時間平均を示した。結晶中心部で第二高調波の強度が高くなっているが、これは以下の理由による。照射時間 10 分での結晶平均温度は約 305 K で、Fig. 8 によると、このとき結晶内部に生じる屈折率差は $2 \sim 3 \times 10^{-5}$ 程度である。さらに、Fig. 12 によるとこの程度

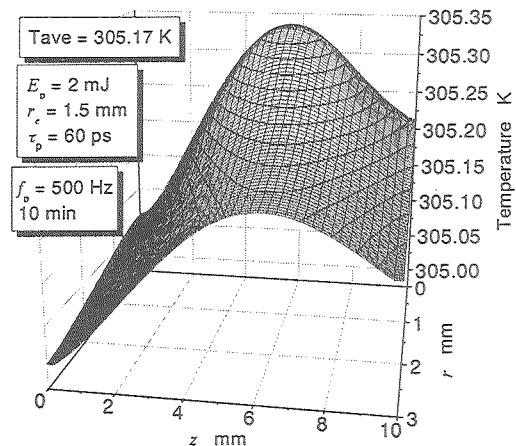


Fig. 13 Temperature distribution in crystal at 10 minutes ($\tau_p = 60$ ps)

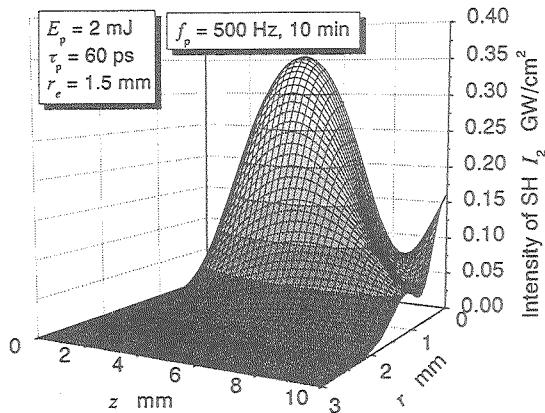


Fig. 14 Intensity distribution of second harmonic in crystal at 10 minutes ($\tau_p = 60$ ps)

の屈折率差があるとき、強度の変動により結晶中ほどで変換効率が高くなる傾向にある。これらから Fig. 14 のような第二高調波強度分布になるわけであるが、先述したように第二高調波が多い部分では、内部発熱量が多く温度が上昇しやすい。このことから、最も制御しにくい結晶内部での温度が高くなる傾向にあることがわかる。

3.3 出射パルス波形解析

繰り返し照射による結晶の温度上昇にともない、位相整合は保たれなくなる。これより変換効率の低下、変動が見られることを前項までに示した。ここで、入射基本波パルスが理想的に時間的、空間的ガウス分布を有していたのに対し、出射されるパルス波形がどのようになるかを以降で示す。

Fig. 9, 10, 11において照射時間 10 分のパルス ($f_p = 500$ Hz なので 300,000 パルス目) による SHG の結果、出射される第二高調波のパルス波形を、Fig. 15, 16 に示す。それぞれパルス幅 60 ps, 125 ps であり、Fig. 10 によると変換効率は 27.59 %, 40.45 % が得られている。これらの図は、パルス内

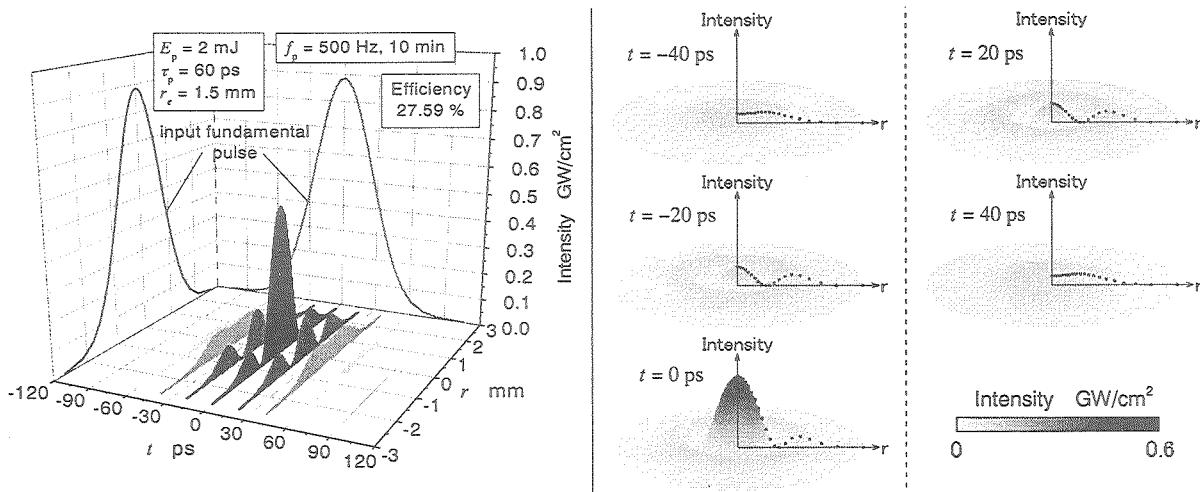


Fig. 15 Variation of second harmonic beam profile during the 300,000th output pulse at 10 minutes ($\tau_p = 60 \text{ ps}$)

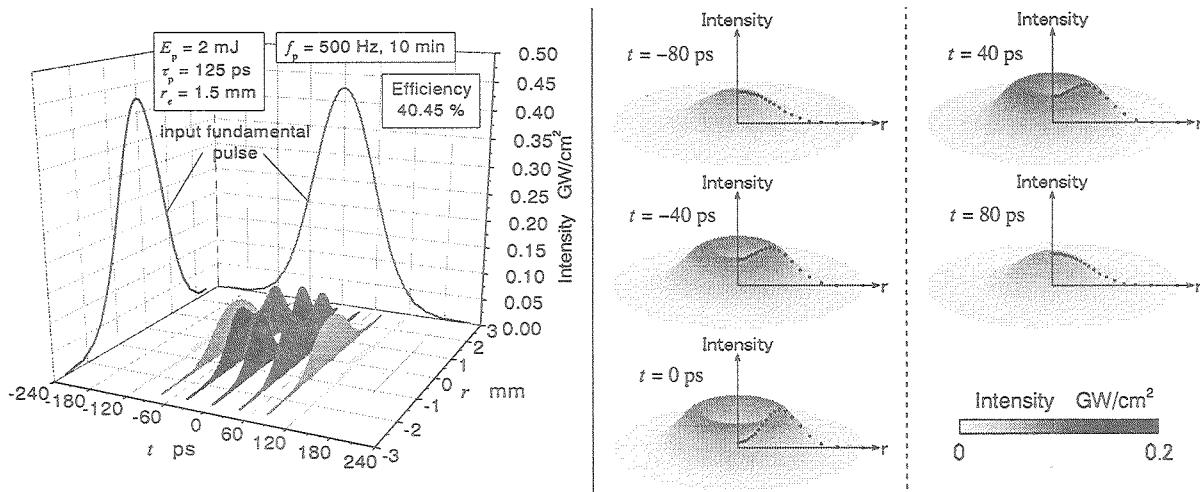


Fig. 16 Variation of second harmonic beam profile during the 300,000th output pulse at 10 minutes ($\tau_p = 125 \text{ ps}$)

の各時刻において観測される瞬間的なビームプロファイルが短時間で変化していることを示し、プロファイルの三次元描画図を右に添えた。パルス幅 60 ps, 10 分照射の出射パルス (Fig. 15) は、入射基本波パルスが Fig. 2 のようであったのに対し、初期の頃に小さなリングが現れ、もっとも入射強度の高くなるパルス中心では、リングの中心に高いピーク強度が見られるといった変化を示す。一方、パルス幅 125 ps, 10 分照射の出射パルス (Fig. 16) は、変換効率自体は先のものよりも高いが、プロファイル中心部で高い強度が得られず、リングモードになっていることがわかる。

これらは、Fig. 12 に示した異なる入射強度の位相不整合の度合いに対する挙動の違いによるものである。入射パルスは 1 パルス中に様々な強度をもつので、各強度に対して出射位置での変換効率が時間的にも空間的にも異なり、その結果、極短時間である 1 パルス内であっても、出射パルスが乱れることになる。

このようなビームプロファイルの乱れは、Fig. 17 に示すように実験でも確認されている¹⁷⁾。中心の高いピーク強度の周りにリングができるのが観測されるが、これは、解析結果 Fig. 15 のパルス中心で見られる形状に近い。

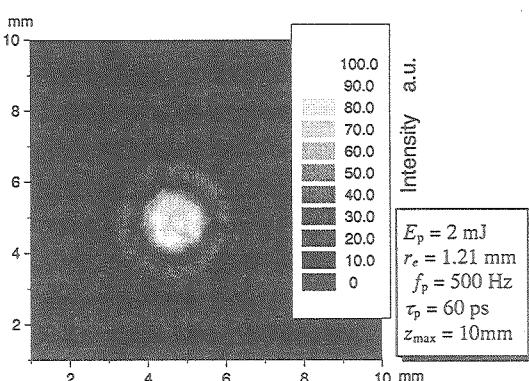


Fig. 17 Example of output beam profile of second harmonic pulse obtained by experiments

我々の解析が、定性的に実現象を予測し得るまでに至ったと言える。ただし、この実験結果は 1 パルス全体の平均値として得られるものであり、これまでに示したようなパルス内の極短時間的な変動を考慮して、プロファイルの瞬間値を実験で確認するのは非常に困難である。この点からも理論的アプローチの重要性を提言できる。

4. 結論

繰り返し照射下での高調波発生は、レーザ吸収があるため結晶の温度変動がある。よってこれが波長変換に与える影響を解析するには、1パルス照射を想定した理論解析では不可能である。

本研究では、繰り返し照射下における第二高調波発生を理論的に解析するため、レーザ吸収を考慮した複素振幅に関する連立方程式を新たに導き、これと熱伝導方程式を連成した解析モデルを構築した。入射レーザはNd:YAGレーザ、非線形光学結晶はKTPを想定した。

本研究により、繰り返し照射下での第二高調波発生は、レーザ吸収による結晶温度上昇に起因して、定常的なものではなく、それが高強度レーザであればあるほど出力が不安定になることを定量的に示した。また、位相不整合下での結晶内強度変動のために最も制御しにくい結晶内部での温度が上がりやすいということがわかった。これはレーザ吸収を考慮することによってのみ解析されうる結果である。さらに、極短時間である1パルス内でも、出射パルス波形が時々刻々変動すると同時に、空間的なプロファイルも複雑に変化することなどを明らかにした。これらは、パルス幅が短くなるほど実験的に確認するのは困難であるため、本研究に示した解析法およびその結果は第二高調波発生に関する理論的アプローチとして非常に有用であるといえる。

謝辞

本研究の一部は、平成13, 14, 16年度科学研修費補助金、また平成16年度21世紀COEプログラム「先進材料デザイン拠点」若手研究者公募型研究費および同博士後期課程学生研究員補助金の交付を受けていることを付記し、謝意を表す。また、ドイツLLT(Lehrstuhl für Lasertechnik, RWTH Aachen)のAlexander Horn氏は、本研究の実験的検証のため自主的にビームプロファイル測定を行い、貴重な結果をご提供いただいた。その好意に対し、深く感謝の意を表す。

参考文献

- 1) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Pershan: Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric, *Phys. Rev.*, **127**-6, (1962), 1918.

- 2) V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan and D. N. Nikogosyan: *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, 3 Rev. Ed., Springer, (1999).
- 3) T. Freegarde, J. Coutts, J. Walz, D. Leibfried and T. W. Hänsch: General analysis of type I second-harmonic generation with elliptical Gaussian beams, *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**-8, (1997), 2010.
- 4) V. G. Dmitriev, V. A. Konovalov, A. Shalaev: Theory of thermal self-action in second harmonic generation in nonlinear optical crystals, *Sov. J. Quant. Electron.*, **5**, 3, (1975), 282.
- 5) K. Kato: Forth and Fifth Harmonic Generation of Nd:YAG Laser in β -BaB₂O₄, *Rev. Laser Eng.*, **18**-1, (1990), 3. (in Japanese)
- 6) Y. K. Yap, T. Inoue, H. Sasaki, Y. Kagebayashi, Y. Mori and T. Sasaki: Long-term operation of CsLiB₆O₁₀ at elevated crystal temperature, *Opt. Lett.*, **23**-1, (1998), 34.
- 7) M. Ohtsu: *Gendai Hikari Kagaku II*, Asakura Shoten, (1994). (in Japanese)
- 8) E. Ohmura, K. Nomura and I. Miyamoto: Influence of Laser Absorption by Nonlinear Optical Crystal on SHG Efficiency, *J. Jpn. Soc. Prec. Eng.*, **69**-2, (2003), 252. (in Japanese)
- 9) K. Nomura, E. Ohmura and I. Miyamoto: Theoretical Analysis of SHG Conversion Efficiency Due to Gaussian Beam Irradiation, *J. Jpn. Soc. Prec. Eng.*, **69**-3, (2003), 390. (in Japanese)
- 10) E. Ohmura, K. Nomura and I. Miyamoto: Beam Profile Analysis of Second Harmonic Generated by KH₂PO₄, *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng.*, **70**-697, C, (2004), 2737. (in Japanese)
- 11) E. Ohmura, K. Nomura and I. Miyamoto: Beam Profile Analysis of Second Harmonic Generated by KTiOPO₄, *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng.*, **70**-697, C, (2004), 2744. (in Japanese)
- 12) D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett: 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser, *Opt. Lett.*, **16**-1, (1991), 42.
- 13) B. Boulanger, J. P. Féve and Y. Guillien: Thermo-optical effect and saturation of nonlinear absorption induced by gray tracking in a 532-nm-pumped KTP optical parametric oscillator, *Opt. Lett.*, **25**-7, (2000), 484.
- 14) K. Kato and E. Takaoka: Sellmeir and thermo-optic dispersion formulas for KTP, *Appl. Opt.*, **41**-24, (2002), 5040.
- 15) Y. Suemune: Thermal Conductivity of Some Ferroelectric Crystals with Hydrogen Bonds, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **22**-3, (1967), 735.
- 16) Z.-C. Tan, G.-Y. Sun, Y.-J. Song, L. Wang, J.-R. Han, Y.-S. Liu, M. Wang and D.-Z. Nie: An adiabatic calorimeter for heat capacity measurements of small samples: The heat capacity of nonlinear optical materials KTiOPO₄ and RbTiOAsO₄ crystals, *Thermochim. Acta*, **352**, (2000), 247.
- 17) A. Horn, private communication, Nov. 12, (2002), or K. Nomura, E. Ohmura, A. Horn and I. Miyamoto: Theoretical Analysis of Second Harmonic Characteristics Generated by KTiOPO₄ Crystal, *Proceedings of SPIE*, **5063**, (2003), 514.