

Harmonic generation of the FEL using NLO II*

Ken Hayakawa^{1,A)}, Toshinari Tanaka^{A)}, Yasushi Hayakawa^{A)}, Keisuke Nakao^{A)}, Kyouko Nogami^{A)},
Takeshi Sakai^{B)}, Isamu Sato^{B)}

^{A)} Institute of Quantum Science, Nihon University 24-1, Narashinodai, 7-chome, Funabashi-shi, Chiba, 274-8501

^{B)} Advanced Research Institute for the Science and Humanities, Nihon University
12-5, Goban-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 102-8251

Abstract

Preliminary experiments for generating harmonics of the free electron laser by using NLO (nonlinear optical crystals) have been performed at LEBRA. We used BBO (β -BaB₂O₄) crystals for SHG (second harmonic generation) and FOHG (fourth harmonic generation). Measured conversion efficiencies are about 30% for the SHG and about 10% for the FOHG between the fundamental wavelengths from 1.8 μ m to 2.2 μ m. The optimization of the optical system of the injection beam line is discussed.

非線形光学結晶を用いた FEL 高調波の発生 II

1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設では、可視近傍のレーザー光の需要に応えるため、非線形光学結晶による FEL 高調波発生を試みている。前回報告したように [1]、KTP (KTiOPO₄) を使用した実験では、位相整合条件が Type II であったため、LEBRA-FEL の短パルス性 (200~300fs) 故、偏光の向きによって異なる群速度のために、結晶中で相互作用すべき光が、空間的に乖離し、第 2 高調波発生については、波長範囲 1.35~1.8 μ m において、~10% の変換効率を得たものの、第 3 高調波に関しては、非線形高調波の 10 倍程度の出力しか得られず、第 3 高調波については実用的といえなかった。この経験を踏まえ、結晶を BBO (β -BaB₂O₄) に換え、実験と光学系の検討を行った。この結晶は波長 0.2~3 μ m の範囲でほぼ透明なため、広範囲に亘って、波長変換に使用することができる。また、Type I の位相整合条件で使用できるため、KTP で起きたような入射光のパルスの乖離は発生せず、高い変換効率が期待できる。但し、許容角が小さく、ウォークオフ角が大きいため、光学系の構成には注意が必要である。本計画の目標は、FEL の基本波の波長 1.4 μ m から 2.6 μ m に亘って、大出力の第 2 及び第 4 高調波を発生させることである。さすれば、0.35 μ m から、6 μ m まで、切れ目無く連続可

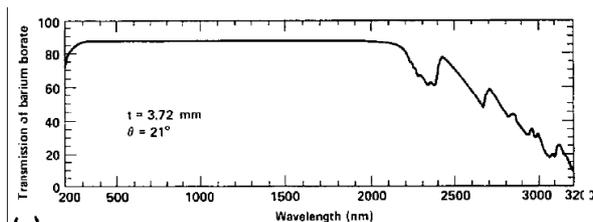


図 1. BBO の透過率。

変波長のレーザー光を供給できるようになる。ここでは BBO を広い波長範囲で使用した場合の特性を知るための予備実験と、最大の変換効率を得るための光学系の検討結果について記す。

2. BBO の特性

今回使用した非線形光学結晶 BBO は単軸結晶で、図 1 [2] に示すように、非常に広範囲の波長領域にわたって、透明な物質である。Type I の位相整合条件によって第 2 高調波を発生させる場合 (SHG)、基本波は、正常光線になるような偏光の向きで入射する。基本波の波長と位相整合角の関係は図 2 に示すようになり、0.41 μ m より波長の長い領域で、SHG が可能であるが、一つの結晶で、広い波長範囲を使おうとすれば、0.7 μ m 以上の領域を使うのが妥当であろう。

3. 予備実験

実験のセットアップを図 3 に示す。2 枚の凹面鏡により、焦点距離がほぼ 1m になる集束系を構成し、

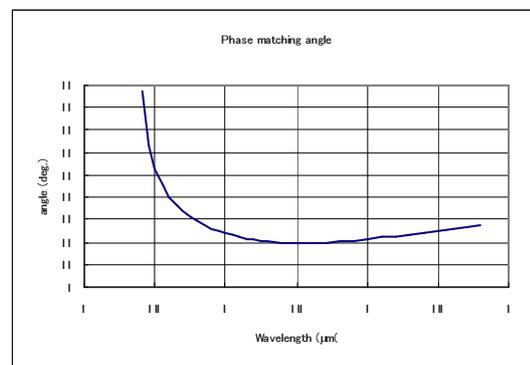


図 2. Type I SHG における基本波の波長と位相整合角の関係。

* 本研究は文部科学省学術フロンティア推進事業 (継続) (平成 17~19 年度) の支援を受けて行った。

¹ E-mail: hayakawa@lebra.nihon-u.ac.jp

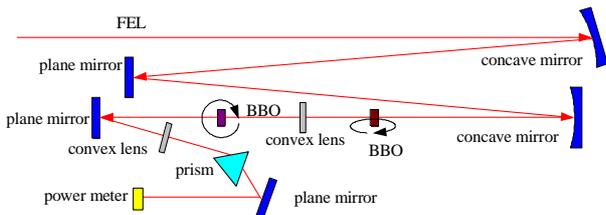


図3.実験のセットアップ。

FELのウエストのできる位置に第2高調波発生用のBBOを置いた。実験室に於いて、ポートを出たFELは偏光面が水平方向になる直線偏光なので、チューニングの回転軸も水平方向となる。BBOを通過した基本波と発生した第2高調波はこの後発散するので、これを凸レンズ(BK7)により再び集光し、そのウエストの位置に第4高調波発生用のBBOを置いた。第2高調波の偏光の向きは基本波に対して垂直になる。第4高調波は第2高調波の2倍波として発生するので、BBOのチューニング軸は垂直である。第4高調波の偏光の向きは、再び水平方向になる。発生した高調波は分散プリズムにより分光し、パワーメータ(サーモパイル)にて各成分のパワーを測定した。変換効率の評価は光学系を通過することによる損失を考慮して、その発生点におけるパワーに換算して求めた。今回測定した波長1.8~2.2 μm では変換効率は表1に示すようになった。値に幅があるのは、主に、FELのパワーレベル変動のため測定系の改良により精度を高める予定である。この光学系による実験で、マクロパルス当り~7mJのFELに対して、およそ30%の効率で第2高調波が、約10%の効率で第4高調波が得られた。これはすでに十分実用に供せられる強さである。

表1.変換効率の実験値、energyはマクロパルス当りのFELエネルギー

波長 (μm)	energy, mJ/P	効率(%)		
		1 \Rightarrow 2	2 \Rightarrow 4	1 \Rightarrow 4
1.8	~ 4.7	20 ~ 29	26 ~ 31	5 ~ 9
2.0	~ 6.6	33 ~ 36	18 ~ 32	6 ~ 11
2.1	~ 7.5	28 ~ 36	23 ~ 36	6 ~ 13
2.2	~ 7.5	34 ~ 41	25 ~ 38	9 ~ 16

4. 入射光学系

予備実験ではあまり考慮していなかったが、前述のごとくBBOによる高調波発生では、入射光に対する許容角が小さいことと、ウォークオフ角の大きいことを考慮して、光学系を設計しなければならない。単一モードのレーザー光では、回折により、最小スポットサイズと広がり角の積は波長によって決まってしまうので、可能な組合せについて変換効率が最大になるような光学系について検討した。但し、

ここでは光学系の収差は考慮していない。

4.1 許容角と位相整合条件

TypeIの位相整合による第2高調波発生の場合、基本波は正常光線となる偏光の向きで入射し、第2高調波の偏光の向きはこれに垂直な異常光線となる。正常光線と異常光線に対する屈折率を n_o 、 n_e で表現し、基本波と第2高調波に対しては添え字、1、2を添付することにより、位相整合条件は整合角を θ_0 、基本波の波長を λ とすると

$$\Delta k = \frac{4\pi}{\lambda} (n_{e2}(\theta_0) - n_{o1}) = 0$$

である。第2高調波の屈折率は角度の関数として、

$$n_{e2}(\theta) = n_{o2} \sqrt{\frac{1 + \tan^2 \theta}{1 + (n_{o2}/n_{e2})^2 \tan^2 \theta}}$$

となる[3]。位相整合角からの変位 $\Delta\theta$ と位相不整合 Δk の関係は、上記の屈折率を位相整合角の近傍で、展開することにより得られる。すなわち、

$$\Delta k = \frac{4\pi \tan \theta_0 \left[1 - (n_{o2}/n_{e2})^2 \right] n_{e2}(\theta_0)}{\lambda \left(1 + (n_{o2}/n_{e2})^2 \tan^2 \theta_0 \right)} \Delta \theta$$

となる。比例係数を g とおく、即ち、 $\Delta k = g \Delta \theta$ 。変換効率はまた、エネルギー密度と有効光路長の2乗に比例する。単一モード(最低次)のレーザー光を集束させた場合、ビーム半径 ω 、広がり角 $\delta\theta$ 、波長 λ の間には次の関係がある。

$$\omega = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2}, \quad \omega_0 = \sqrt{\frac{\lambda z_R}{\pi}}, \quad \delta\theta \omega_0 = \frac{\lambda}{\pi}$$

ここで、 ω_0 はウエスト位置におけるビーム半径、 z_R はレイリー長である。ガウス分布を仮定すると角度の広がり分布は、 $u(\theta)$ は

$$u(\theta) = A_0 e^{-\left(\frac{\theta}{\delta\theta} \right)^2}$$

となる。ここで A_0 は規格化定数である。位相整合角からのずれの変換効率に及ぼす影響を取り入れるた

めには $\left(\frac{\sin \Delta k L / 2}{\Delta k L / 2} \right)^2$ をこの分布に乗じて積分すれば

よいのだが、この積分の結果は複雑で見通しが良くない。代わりに同じ半値幅を持つガウス分布を用いる。すなわち、

$$y(\theta) = e^{-\left(\frac{\Delta k L / 2}{s} \right)^2}$$

を使う。ここで $s=1.67144$ である。先に求めた関係を使うと、

$$y(\theta) = e^{-\left(\frac{\theta}{\alpha} \right)^2}$$

となる。ここで $\alpha=2s/(gL)$ である。ビームは軸対称で、方位角を ϕ とすると有効なパワー $P(\lambda)$ は

$$P(\lambda) = A_0 \int_0^{\infty} \int_0^{\pi} y(\theta) u(\theta) \theta d\theta d\phi = \frac{\alpha^2}{\alpha^2 + \delta\theta^2}$$

となる。これを空間密度に変換するために、ウエスト位置及び結晶端におけるビームの断面積の平均値で割ると、

$$p(Z_R) = \frac{2P(\lambda)}{\omega_0^2 + \omega^2} = \frac{2}{\omega_0^2} \frac{(\alpha^2 / (\alpha^2 + \delta\theta^2))}{(1 + (L/2Z_R)^2)}$$

$$= \frac{2\pi}{\lambda} \frac{(2s/gL)^2}{((2s/gL)^2 Z_R + \lambda/\pi)(2 + (L/2Z_R)^2)}$$

となる。変換効率はこの量と L^2 の積に比例する。この関数は、 $L = 5\text{mm}$ の結晶に対して、第2高調波発生が可能な波長帯域において、 $Z_R = 0.01 \sim 0.025\text{m}$ で最大値を持ち、 Z_R の増加に従って緩やかに減少する。波長 $0.7\mu\text{m}$ では $0.005\text{m} < Z_R < 0.3\text{m}$ の範囲で、波長 $2.6\mu\text{m}$ では $0.005\text{m} < Z_R < 0.07\text{m}$ の範囲で最大値の90%以上の値を持つ。また、この関数は概ね L^2 に反比例するため変換効率の最大値はあまり結晶の長さ依存しない。但し、 L が小さいほど有効な Z_R の範囲は狭くなる。

4.2 ウォークオフ角

非等方性結晶内で異常光線は波面の進む向きとエネルギーの伝播する向きが異なる。入射光に対して、高調波のエネルギー伝播の向きがなす角度をウォークオフ角と呼んでいる。BBOにおいてType IのSHGの場合、この角度は、波長 $0.7\mu\text{m}$ から $2.6\mu\text{m}$ の範囲で、 4.3° から 2.8° の範囲で変化する。基本波と高調波が乖離すると変換効率が低下する。ウォークオフ角の影響を見るために、以下のような考察を行う。すなわち、ビーム断面の形状は基本波と第2高調波で同じとし、基本波の最小ビーム径 ω_0 になると仮定する。結晶への入射点で両者が一致して、結晶の終端で、 $2\omega_0$ だけ位置がずれる場合のレイリー長を計算する。ウォークオフ角を ρ とすると $\rho L = 2\omega_0$ より、

$$Z_R = \frac{\pi L^2 \rho^2}{4\lambda}$$

である。これは波長 $0.7\mu\text{m}$ の場合、 $Z_R = 0.16\text{m}$ 、波長 $2.6\mu\text{m}$ の場合、 $Z_R = 0.026\text{m}$ になる。

4.3 群速度非整合

前に述べたように、Type IのSHGの場合入射光のパルスが空間的に乖離して、変換効率がゼロになるようなことはないが、高調波との群速度の違いにより、結晶中を進むに従って、パルスの中心が前後にずれ、高調波のパルス幅が入射波のパルス幅より広くなり、また変換効率が光路長の2乗に比例しなくなる。波長 $1.5\mu\text{m}$ において基本波と第2高調波の群速度がほぼ等しくなり、これより短波長側では高調波の方が高速になり、長波長側では基本波の方が高速になる。その差は波長 $0.7\mu\text{m}$ では -270fs/mm 、 $2.6\mu\text{m}$ では $+124\text{fs/mm}$ である。FELのパルス幅は現状では

$200 \sim 300\text{fs}$ であるから、例えば、 $2.6\mu\text{m}$ のFELに対しては、長さの2乗に比例する効率が得られる長さは 2mm 程度になるので、 $1.5\mu\text{m}$ の光に比べ、この理由だけで、効率は半分以下になり、高調波のパルス幅は倍以上になると思われる。この問題を回避するには、結晶の長さを短くし、スポット径を小さくして、エネルギー密度を上げればよいのであるが、結晶に与えるダメージは大きくなる。

4.4 入射ビーム

自由電子レーザーは光共振器の一方の鏡の中心に穿たれた貫通孔を通して取り出された後、平行ビームにされ、実験室まで運ばれる。平行化されたビームの半径 r はおよそ $1.54\lambda/\rho$ である。ここで ρ は鏡にかけられた取り出し穴の半径である。現在この値は 0.25mm なので、 $r = 6160\lambda[\text{m}]$ である。平行化されたビーム径をウエストの値とみなせば、レイリー長を求めることができ、以下ようになる。

$$6160\lambda = \sqrt{\frac{\lambda Z_R^*}{\pi}}, \quad Z_R^* = 6160^2 \pi \lambda \approx 120 \times 10^6 \lambda$$

集束光学系の焦点距離を f とすると、 $Z_R^* \gg Z_R$ の場合、 $f^2 = Z_R^* Z_R$ なる関係が成り立つので、この関係から、入射光学系の焦点距離を決めればよい、但し、結晶中では焦点距離が屈折率倍だけ長くなり、波長が屈折率分の1だけ短くなることを考慮しておかなければならない。

5. まとめ

BBOによる高調波発生の予備実験から、基本波の波長 $1.8\mu\text{m} \sim 2.2\mu\text{m}$ に対して、第2高調波は30%程度の、第4高調波は10%程度の変換効率が得られ、少なくともこの帯域では、実用化レベルの強度が得られることを示した。入射光学系の検討から、LEBR-FELが短パルスであることを考慮すれば、短い結晶を用いるのが、変換効率の点からは有利であることが明らかになったが、エネルギー密度が高くなるため、結晶に損傷を与える危険性は大きくなる。理想的な光学系を構築するには、FELのように短パルスの光がバースト的に照射されるような場合の損傷の閾値についての知見が必要である。

参考文献

- [1] K.Hayakawa, et al "Harmonic generation of the FEL using NLO II", Proc. of the 4th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 32th Linear Accelerator Meeting in Japan, 2007 Wako Japan, pp583-585
- [2] D.Eimerl, L.davis, S.Velsko, E.K.Graham and A.Zalkin "Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate", J.Appl. Phys. 62(5), 1 1968-1983, 1987
- [3] V.V.G.Dmitriev, G.G.Gurzadyan and D.N.Nikogosyan "Handbook of Nonlinear Optical Crystals", Third edition, Springer, Moscow 1999