

# LIGHT EMISSION FROM THE NONLINEAR OPTICAL CRYSTAL BY FEL IRRADIATION

Ken Hayakawa<sup>#</sup>, Toshinari Tanaka, Yasushi Hayakawa, Takeshi Sakai,  
Keisuke Nakao, Kyouko Nogami, Manabu Inagaki  
LEBRA, Institute of Quantum Science of Nihon University  
7-24-1 Narashino-dai Funabashi, 274-85011

## Abstract

Measurements of the polarization and the local spectra of the visible light emitted from the nonlinear optical crystal BBO by the infrared FEL irradiation were performed at LEBRA. The visible lights induced by the horizontally polarized FEL consist of two components which polarized vertical and horizontal. Each component has a similar structure which consists of a large spot near the beam axis and bright arcs. The vertically and the horizontally polarized arcs faced each other up and down. The spectrum of the horizontally polarized spot has very broad peak which spreads from red to infrared region.

## FEL 照射による非線形光学結晶の発光

### 1. 概要

日大 LEBRA FEL の照射による非線形光学結晶 BBO による 2 次の高調波発生の位相整合角から数度離調した角度で現れる発光について昨年の発表<sup>[1]</sup>の後に得られた知見を報告する。偏光板による偏光の向きの測定と、光ファイバー入力のモノクロメーターによる局所分光を行った。偏光の測定では、水平方向と鉛直方向がはっきり分離され、それぞれ、中心付近の大きなスポットと外周部の弧状の輝線が観測された。鉛直偏光の弧が上側に現れる配置では、水平偏光の弧は観測できる場合は下側に現れる。また、確認できる場合は鉛直偏光の弧に比べ、暗いが、一回り大きい。中心付近のスポットは、分光測定から、どちらの偏光の光も結晶の角度に依存してスペクトルは大きく変化するが、画像からも容易に推測できるように異常光線のほうが波長の短い成分を含む割合が多。BBO は負の一軸性結晶であるため、2 次の高調波発生の場合、Type I、Type II いずれの位相整合条件の場合でも高調波は異常光線（この場合は鉛直偏光）になる。FEL の波長が 1600nm より長波長の場合、可視光として観測される光は、2 次の高調波より短い波長であるので、基本波から直接生成されるとは考えにくく、異常光線ばかりでなく、正常光線も含まれることもあり、複雑なプロセスの存在が想像される。また、弧に沿った濃淡の分布は有効非線形係数の方位角依存性に起因するようである。

### 2. セットアップ

実験のセットアップを図 1 に示す。実験室の出力ポートを出た FEL は焦点距離 500mm の CaF<sub>2</sub> 製の凸レンズにより、BBO に集光する。BBO の発光を観測するために、BBO の下流に偏光板とスクリー

ンを置き、スクリーンに投影されたスポットを CMOS カメラで撮影した。また、スクリーン上の測定を行いたい位置に光ファイバーの先端を置き、対応する部分の光を光ファイバー入力の分光器により分光した。

#### 2.1 CMOS カメラ

使用した CMOS カメラは独 IMAGINGSOURCE 社製 DFK22BUC3、35 万画素、USB2.0 インターフェイスを持ち、外部トリガーに対応している。赤外線カットフィルターが内蔵され 650nm より長い波長の光はカットされる。このカメラでマシントリガーに同期して動画を撮影し、必要に応じ、これより静止画を取り出す。

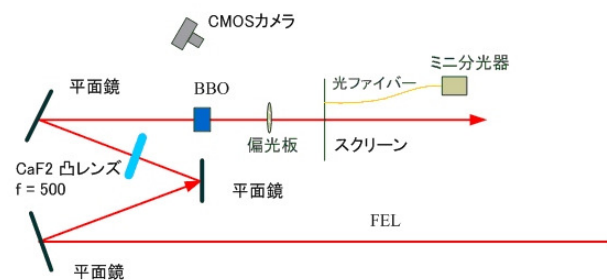


図 1：実験のセットアップ非線形結晶からの発光を偏光板を通してスクリーンに投射し、CMOS カメラあるいは光ファイバー入力の分光器にて計測する

#### 2.2 ミニ分光器

浜松ホトニクス製ミニ分光器 C10083CA、分解能 ~5nm、光ファイバー入力の光学系を持ち、裏面入射型 CCD イメージセンサーを使用。光ファイバーとして、コア径 600 $\mu$ m の石英ファイバーを使用。

<sup>#</sup>hayakawa@lebra.nihon-u.ac.jp

光学系の効率、グレーティングの回折効率、イメージングセンサーの感度等の分光感度については補正された値が出力される。光ファイバーの特性は反映されないが、300~900nm の範囲ではほとんど減衰が無い (0.15dB 以下) ので、ほぼ正確なスペクトルが得られると考えられる。

### 3. バーストモード運転における FEL

昨年度より、電子銃をバーストモードでドライブできるようになり、バンチの数を間引き、バンチ当たりの電流値を増加させたモードでリニアックを運転できるようになった<sup>[2]</sup>。FEL の利得は概ねビーム電流値に比例するためこのモードでは FEL の発振が容易になり、ピーク強度も増加することが期待される。実際に、このモードにおける FEL の発振を

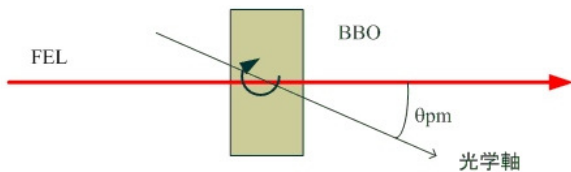


図 2 : FEL の光軸及び結晶の光学軸の位置関係および、チューニングの向きを示す。

実現している。発振した FEL のマイクロパルス幅を干渉計を使って測定したところ、波長 1600nm の時、半値全幅がおよそ 30 $\mu$ m であった。時間幅ではおよそ 100fs となる。バーストモードは 64 分周と 128 分周の二つのモードがあるが、64 分周モードの場合、マクロパルス当たりのエネルギーは通常モード

に比べ、数分の 1 になるが、ピークパワーは 10 倍程度増加する。実際、マクロパルス当たりのエネルギーが 0.5mJ の時、ピークパワーは~8MW になる。本シリーズの実験は全てこのバーストモードの電子ビームで発振させた FEL を使用した。

### 4 実験結果

#### 4.1 スポットパターンと偏光

LEBRA FEL は、各実験室において出力ポートより取り出される光は全て水平方向に偏光している。本実験において BBO を用いた第 2 高調波の発生は Type I の位相整合条件を使う。すなわち、入射光が正常光線になるように結晶を配置し、チューニングは光軸に垂直な水平軸の周りに結晶を回転させることにより行っている。一連の実験では FEL の光軸及び結晶の光学軸の位置関係は図 2 のようにした。この実験で使用した BBO のカット角は 21 度、厚さは 5mm である。カット角とは、結晶の入射面に立てた法線と光学軸との成す角度のことで、波長 1000~2500nm の範囲で、垂直入射に近い入射角で位相整合が実現できる値を選んだ。

問題の発光現象は、第 2 高調波の位相整合条件が満足された状態から図で時計回りに結晶を回転させると出現する。波長 1600nm から 2600nm の範囲で調べたが、2500nm より長い波長ではほとんどこの種の発光は見られなかった。これは発光が長波長側に移行したために、目視あるいは CMOS カメラでは確認できないのかもしれない。

発光が確認できた波長 1600nm から 2400nm では、

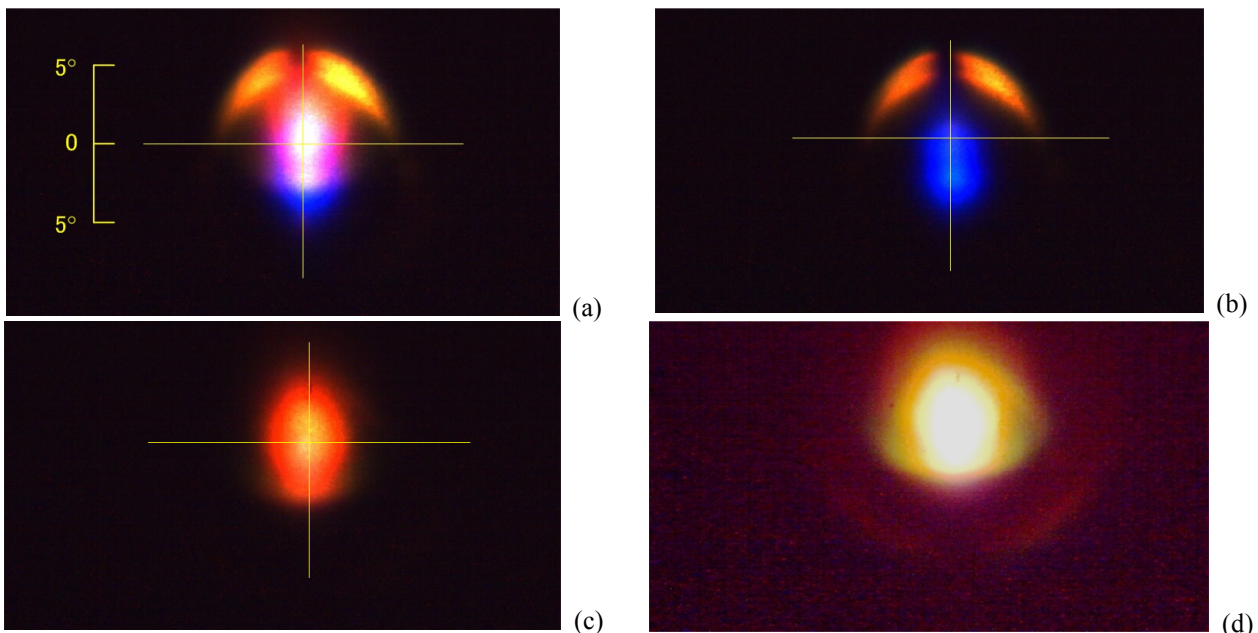


図 3 : FEL 波長 1980nm、離調角 3 度、偏光板なし(a)、鉛直偏光成分(b)、水平偏光成分(c)、(c)暗部を強調。十字線の交点は FEL のビーム軸に対応、(a)左側のスケールはビーム軸に対する角度を示す。

色彩や形状に相違はあるものの基本的なパターンは共通であった。波長 1980nm における例を図 3 示す。結晶からスクリーンまでの距離は 135mm、画像の上端から下端までの幅は約 50mm である。この図は第 2 高調波の位相整合角から結晶の角度を 3 度離調した角度で得られた画像である。

図 3 (a)で、左側のスケールはスクリーン上の位置と光軸に対する角度との関係を示している。また十字線の交点は FEL の光軸がスクリーンと交差する点を示している。明るい黄あるいは橙色の 2 重に見える明るい弧状の輝線が上部に現れている。左右対称であるが、対称面の近傍は途切れているか暗くなっている。この暗部は結晶を鉛直軸の周りに回転すると、弧に沿うように移動する。この弧の下方に赤紫色の大きなスポットが現れ、その下端部は青く色づいている。この画像では見えていないが、下方にも弧状の輝線が存在する。結晶の下流に可視光用偏光フィルターを挿入して像を観測した。鉛直偏光成分を取り出したのが図 3 (b)である。鉛直偏光成分は第 2 高調波と同じ偏光の向きで、結晶内では異常光線である。上部の弧状の輝線と図 5 (a)ではわずかに見えていた青色は光軸よりやや下方にある青いスポットの一部であった。

偏光の水平方向成分を取り出したのが図 3 (c)である。水平偏光成分は基本波と同じ偏光の向きで、結晶内では正常光線である。光軸を中心とした縦長の楕円形の赤いスポットが現れる。この画像を処理したものが図 3(d)である。下方に、薄く弧状の輝線が認められる。上部の弧と同じように、左右対称であるが、対称面の近傍は途切れているか暗くなっている。

結晶をさらに回転させ離調角を 6 度の場合と比較する (図 4)。上部の弧の位置が下方に移動し、数

も増え、曲率も小さくなって行くようである。光軸付近のスポットは不鮮明になっている。鉛直偏光成分を取り出した像が図 4 (b)である。水平方向成分に隠されていたと思われる中央付近のスポットが見えるように、少しレンズの絞りを広げた状態で撮影した。上部の弧は離調角 3 度の時と同じく、鉛直偏光であることがわかる。また中央付近に青色のスポットが確認できる。このスポットは、弧状の輝線と異なり、結晶の回転にもかかわらず光軸に対する位置は変わらないように見える。水平方向に偏光している中央のスポットの位置はやや上昇しているように見える。レンズの絞りを広げた状態で撮影すると、赤く見えた部分は黄色く発色するようになり、下方に緑色の淡いスポットが出現している。また下部の弧もかすかに認められる。

#### 4.2 スペクトル

スポット及び弧の局所的なスペクトルを測定するために、光ファイバー入力分光器を使った。得られたスペクトルの例を示す。波長 1600nm、離調角 3.5 度鉛直偏光成分の画像を図 5 (a)に、中央部の青色のスポット、弧状の輝線の外周部、および内周部のスペクトルを図 5 (b)に示す。中央部の青色のスポットのピーク波長は 466nm である。外周部は波長 542nm と 558nm にピークがあるように見える。内側は 586nm あたりにピークを持つ。このスペクトルから弧の部分は 2 重になっていると考えられる。外周部のスペクトルは二山あるように見え、さらに分離できそうだが、このデータでは明らかでない。結晶からの距離を離して測定すれば分離できるかもしれない。水平偏光成分の画像とスペクトルを図 5 (c)、(d)に示す。この波長と角度では下部の弧は確認できなかった。水平偏光成分は鉛直偏光成分と異

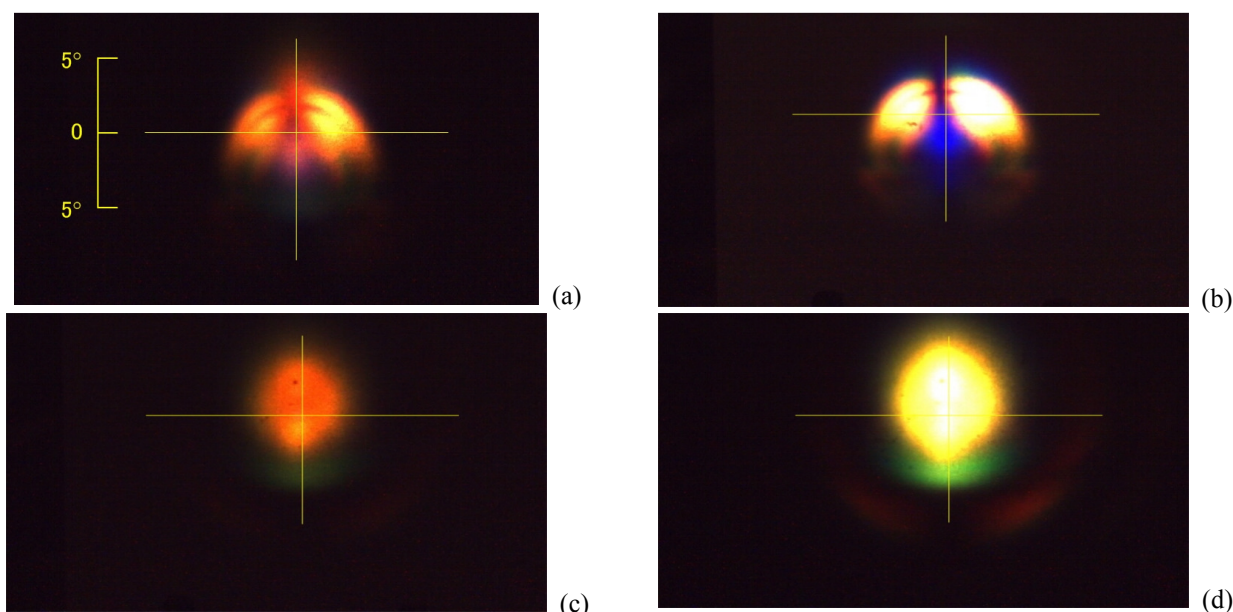


図 4 : FEL 波長 1980nm、離調角 6 度、偏光板なし(a)、鉛直偏光成分(b)、水平偏光成分(c)、(c)暗部を強調。十字線の交点は FEL のビーム軸に対応、(a)左側のスケールはビーム軸に対する角度を示す。

なり、非常に幅広いスペクトルを持ち、赤外領域にまで広がっている。これらのスペクトルは結晶の角度を変えると、大きく変化する。

## 5 まとめと考察

非線形光学結晶 BBO を使った FEL の第 2 高調波発生の位相整合角付近で発生する可視光の放射現象について調べた。FEL 波長 1600nm から 2500nm にわたってこの現象が確認された。現在データは取得していないがさらに短波長でもこの現象は発生している。どの場合も FEL の光軸と結晶の光学軸の成す角度を増加させる向きに結晶を回転させると光軸付近の大きなスポットと、それを取巻くような弧状の輝線が現れた。この大きなスポットと弧の組合せは、水平及び鉛直偏光成分各々に存在し、弧は上下対向するように現れる。水平偏光成分は FEL の偏光の向きと同じで、結晶中では正常光線となる。鉛直偏光成分は第 2 高調波と同じ偏光の向きで、結晶中では異常光線となる。画像及びスペクトルの解析から、少なくとも鉛直偏光の弧は 2 重以上になっており、離調角が大きくなるに従って曲率半径は小さくなる。FEL の波長と結晶の角度により様々に変化するが、一般に、鉛直偏光成分の方が波長は短い。

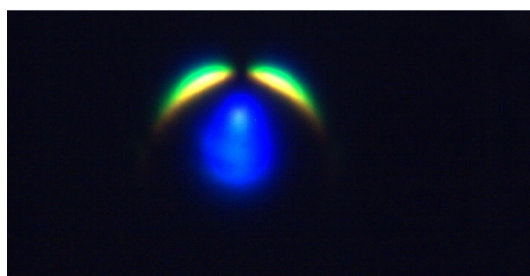
非線形光学結晶から円錐状に光が放射される現象はいくつか報告されているが、それらは入射光があるいは 2 次の高調波が可視光になるような波長領域で起きる現象で、本報告のように 2 次の高調波また赤外という状況で可視光が観測される例はあまり無いようである。

この発光現象について、その性質は測定を重ねることにより、徐々に明確になってきたものの、メカニズムについては依然として不明である。多少ヒン

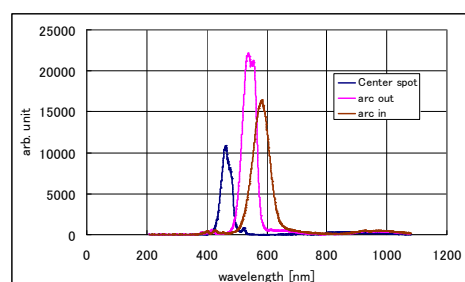
トになりそうなのは、弧の暗部が結晶の鉛直軸周りの回転に対して、弧の円周方向に沿って移動するという現象である。BBO は負の一軸性結晶で、3m と標記される点群に属する。この対照性を持つ結晶の有効非線形感受率の大きさは光学軸に対する方位角  $\phi$  に対して、Type I あるいは Type II の偏光の組合せにより、 $\cos 3\phi$  あるいは  $\sin 3\phi$  のような依存性を示す。結晶を鉛直軸の周りに回転させることは極角ばかりでなく方位角も変化させることになるので、暗部の位置が動くのとは符合する。すなわち、非平行の位相整合条件と有効非線形感受率の組合せから説明できる可能性はあるのではないと思われる。

光軸付近に現れるスポットについてはあまり手がかりが無い。集束した FEL の電場により、結晶が乱れ、その乱れによる散乱とも考えられるが、憶測の域を出ない。

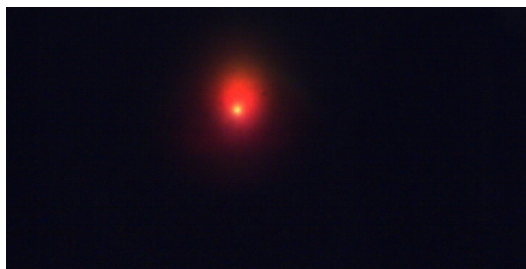
- [1] K.Hayakawa, et al., "STRANGE LIGHT EMISSION FROM THE NONLINEAR OPTICAL CRYSTAL BY FEL IRRADIATION", Proceedings of the 8th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Tsukuba, Aug. 1-3, 2011, pp982-984
- [2] K.nakao, et. al., "Lasing of Near Infrared FEL with the Burst-mode Beam at LEBRA", Proceedings of the 33<sup>rd</sup> International Free Electron Laser Conference, Shanghai, China, Aug. 22-26, 2011, p535.
- [3] Jie Bi, et al., "Colored conical emission in BBO crystal induced by intense femtosecond pulses", Optics Communications 284(2011) 670-674
- [4] R.A. Rupp and F.W.Drees, "Light-Induced Scattering in Photorefractive Crystal", Appl. Phys. B39, 223-229 (1986)



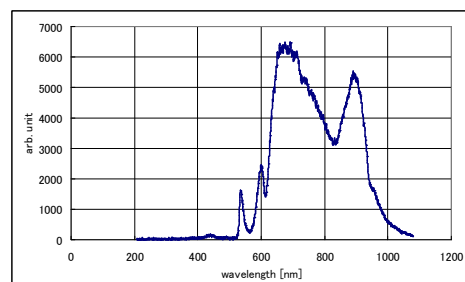
(a)



(b)



(c)



(d)

図 5 : FEL 波長 1600nm、離調角 3.5 度、鉛直偏光成分画像(a)、鉛直偏光成分スペクトル(b)、各々のピークは、短波長側から、中央部、弧外周部、弧内週部に対応する。水平偏光成分(c)、水平偏光成分スペクトル。水平偏光成分はスペクトル幅が非常に広く、赤外光領域まで広がっている。