

# 波長可変・連続光励起レーザーを用いた光学結晶の非線形係数 相対評価

小山 美緒・伊藤 弘昌・野竹 孝志・南出 泰亜

理化学研究所光量子工学研究センター 〒980-0845 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 519-1399

## Second-Order Nonlinear Coefficient Measurement by a Tunable Continuous-Wave Pump Laser

Mio KOYAMA, Hiromasa ITO, Takashi NOTAKE and Hiroaki MINAMIDE

RIKEN Center for Advanced Photonics, RIKEN, 519-1399 Aramaki-aza Aoba, Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi, 980-0845

A second-order nonlinear coefficient measurement was demonstrated using a CW tuning laser with a wavelength range of 1.55  $\mu\text{m}$ . We measured the second harmonic outputs from a MgO (5 mol%) -doped LiNbO<sub>3</sub> (LN) crystal and from an organic nonlinear 4-N,N-dimethylamino-4-N-methyl-stilbazolium tosylate (DAST) crystal. The elicited measurements were accurately fitted with the use of a theoretical model, and the maximum values of second-order nonlinearities were obtained based on precise analyses. Using the value of  $d_{33}^{\text{LN}} = 20.8$  pm/V as a reference, the nonlinear coefficient of DAST was estimated to be  $d_{11}^{\text{DAST}} = 360$  pm/V. Highly stable measurements were achieved with the CW laser and a small measurement area was achieved in the range of the beam using tunable wavelengths with an approximate diameter of 23  $\mu\text{m}$ .

**Key words:** nonlinear coefficient, organic crystal, crystal evaluation, wavelength tuning measurement

### はじめに

近年、巨大な二次の非線形係数(数百 pm/V)をもつ有機非線形結晶の開発が進んでいる。特に、4-N,N-dimethylamino-4-N-methyl-stilbazolium tosylate (DAST)<sup>1-4)</sup> や N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA)<sup>5-8)</sup> といった有機非線形結晶は、超広帯域な周波数範囲のテラヘルツ波発生に用いられており、テラヘルツギャップをほぼ埋め尽くす結晶として注目が集まっている<sup>9-14)</sup>。一方、大型単結晶の育成はいまだ開発途中であり、結晶ごとにばらつきがある。このため、利用にあたっては、個々の非線形係数を知らることが重要となる。一般的に、非線形係数の評価はメーカーフリッジ法<sup>15)</sup>が代表的であるが、計測にはサンプルの光入射面と裏面が高精度に平行となる加工を必要とする。このため、簡便なサンプル加工、または加工なしで、迅速で正確に計測できる手法が求められている。

これまでに、単色の波長 1.55  $\mu\text{m}$  パルスレーザー光源を用いた、ウェッジ型サンプルの非線形係数を定量的に計測

する装置を開発した<sup>16)</sup>。これは、結晶面上で第二高調波出力を広い範囲に計測することで結晶の優れた箇所を明確化し、適した場所を選んで非線形係数を評価することができ装置である。従来のメーカーフリッジ法に対して、サンプル加工に高い精度を必要としないため、簡便で迅速な結晶検査が可能である。一方で、サンプルには依然ウェッジ構造が必要であり、さらに、ウェッジ角度には結晶の屈折率によって、計測に必要な角度が存在する。また、微小変化する曲面である場合には、第二高調波が理論通りに発生せず、測定結果から非線形係数を導き出すことが難しい場合もある。

本論文では、波長可変光源を用いた非線形係数計測方法を報告する。Table 1 に本報告の波長可変光源を用いた計測方法と、単色光源を用いた従来の方法の特徴を示す。波長可変光源では微結晶のような微小範囲での計測が可能であり、計測の空間解像度が高い。また、一般的に連続光(CW)を用いることで、パルス光源を用いたときよりも

E-mail: syu.m.koyama@gmail.com

Table 1 Comparison of features of nonlinear coefficient measurement with tunable wavelength and monochromatic laser sources.

Laser type	Tunable wavelength	Monochromatic
Minimum acquisition area	~10 $\mu\text{m}$	~100 $\mu\text{m}$
Laser stability	High	Normal
Sample format	Wedge, Plane-parallel, Undulated	Wedge
Weakness	Bulky	Large angled surfaces

出力が安定であるため測定誤差が少なく、高精度な計測が可能になる。計測可能なサンプル形状は、ウェッジ形状に加え、平面や曲面のサンプルにも対応できる。このように、波長掃引光源を用いることによって、サンプルの条件に対して柔軟に対応可能な非線形係数計測が可能になる。

### 1. 計測手法

非線形波長変換による第二高調波の出力  $P_{2\omega}$  は、一般的に次の式で表される<sup>17)</sup>。

$$P_{2\omega}(L) = 2 \left( \frac{\pi}{\mu_0} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{L^2 d^2 \omega^2 P_\omega^2}{n_\omega^2 n_{2\omega}} \frac{A}{\left( \frac{\Delta k L}{2} \right)^2} \sin^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (1)$$

$L$  は結晶厚、 $\omega$  は基本波の角周波数、 $P_\omega$  は基本波の出力、 $A$  はビーム面積、 $\Delta k$  は位相不整合量、 $d$  は非線形係数、 $n_\omega$ 、 $n_{2\omega}$  は基本波および第二高調波に対する屈折率である。

計測では波長を掃引するため、波長を変数に含む項を明確に示すと、式 (1) は次のようになる。

$$P_{2\omega}(L) = K \frac{d^2}{n_{(\lambda)}^2 n_{\left(\frac{\lambda}{2}\right)} \left( n_{\left(\frac{\lambda}{2}\right)} - n_{(\lambda)} \right)^2} \times \sin^2 \left( \frac{2\pi L}{\lambda} \left( n_{\left(\frac{\lambda}{2}\right)} - n_{(\lambda)} \right) \right) \quad (2)$$

$$K = 2 \left( \frac{\pi}{\mu_0} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{c^2 P_\omega^2}{A} \quad (3)$$

$\lambda$  は基本波の波長、 $c$  は光速である。この式が示すように、第二高調波の出力は、波長変化による屈折率変化に対して正弦関数の二乗で増減する。この周期的な増減の振幅値が、非線形係数の情報を含んでいる。このとき  $L$  は定数である。第二高調波出力の振幅値の計測のためには、正弦関数の位相が、波長掃引の始まりと終わりの間で  $\pi$  以上回転すればよい。この関係を式で表すと次のようになる。

$$\left| \frac{2\pi L}{\lambda_s} \left( n_{\left(\frac{\lambda_s}{2}\right)} - n_{(\lambda_s)} \right) - \frac{2\pi L}{\lambda_e} \left( n_{\left(\frac{\lambda_e}{2}\right)} - n_{(\lambda_e)} \right) \right| \geq \pi \quad (4)$$

添え字の  $s$  は波長掃引の開始波長、 $e$  は波長掃引の終了波長を表している。式 (4) は式 (5) のように整理される。

$$\left| 2L \left( \frac{\Delta n_s}{\lambda_s} - \frac{\Delta n_e}{\lambda_e} \right) \right| \geq 1 \quad (5)$$

$\Delta n_s$  は波長掃引開始波長に対する基本波と第二高調波の屈折率の差、 $\Delta n_e$  は波長掃引終了波長に対する基本波と第二高調波の屈折率の差を表している。例として、LiNbO<sub>3</sub> (LN) 結晶の  $c$  軸方向の屈折率を用いて、左辺が 1 となる結晶厚を計算すると、Fig. 1 のようになる。横軸は、1.5~1.6  $\mu\text{m}$  の範囲の、波長掃引の中心波長を表している。

曲線に添えた数値は、波長掃引の可変幅を表している。この図から、波長掃引の中心波長と波長可変幅に対して、計測に必要なサンプル厚の最小値がわかる。このように、波長掃引による非線形係数計測は、式 (5) によりサンプル厚  $L$  に依存している。そのため、 $L$  が決定すれば、サンプルの形状によらず計測が可能である。波長可変幅が広いほど、薄いサンプルを計測できる。また、基本波と第二高

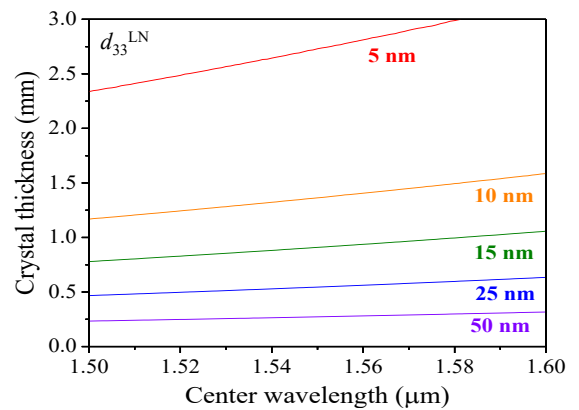


Fig. 1 Crystal thickness eliciting  $\pi$ -phase shifts in accordance to equation (5) based on wavelength tuning, as a function of the center wavelength. The refractive index of LN ( $c$ -axis) was used in the calculation. The values of  $\Delta\lambda$  are shown as the parameters of the tuning range alongside each of the plotted curves.

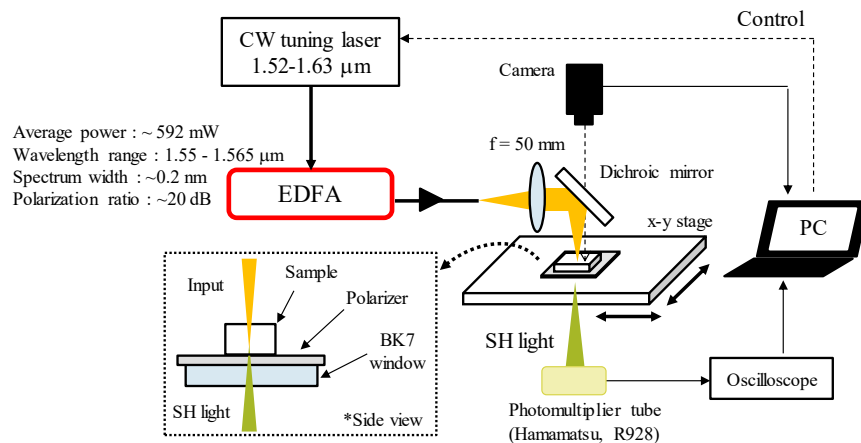


Fig. 2 Experimental setup of nonlinear coefficient measurement system with wavelength tuning laser.

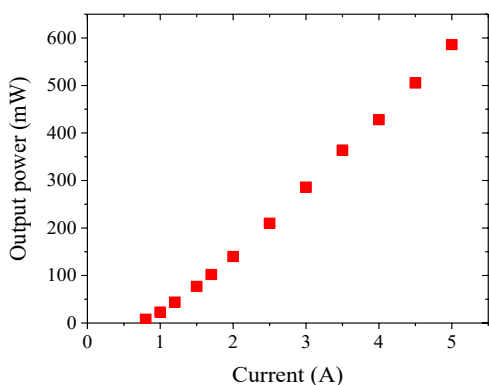


Fig. 3 Output power of amplified ECDL emission as a function of pump current in an Er-doped fiber amplifier at a wavelength of  $1.55 \mu\text{m}$ .

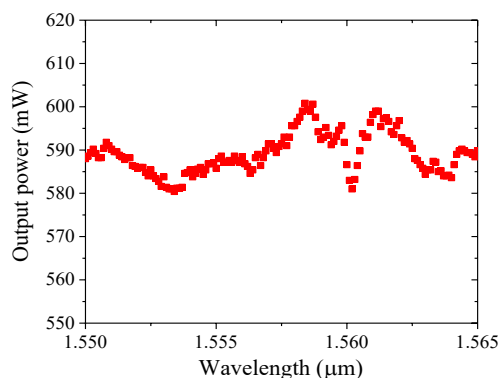


Fig. 4 Output power of the amplified ECDL emission as a function of wavelength. The pump current was fixed at 5 A. Plotted data represent average values from five measurements.

調波の屈折率差が大きいほど波長の掃引に対して位相の回転が早くなるため、薄いサンプルや狭い波長可変幅に対応できる。

本論文では、はじめに開発した測定方法での非線形係数評価の基準値を決めるため、十分開発され品質が安定している無機結晶の  $\text{MgO}$  5 mol% を添加した  $\text{LiNbO}_3$  (LN) の  $d_{33}^{\text{LN}}$  を用いた第二高調波を計測する。同時に、計測手法と装置性能を確認する。次に、非線形係数の計測対象となる、テラヘルツ波発生や電気光学検出において性能指数が高く、近年注目が集まっている有機非線形結晶 DAST の as grown 結晶の  $d_{11}^{\text{DAST}}$  を用いた計測を行う。また、 $d_{33}^{\text{LN}}$  を参照とした非線形係数の相対評価を行う。

## 2. CW 波長可変 $1.55 \mu\text{m}$ 帯光源および実験系

装置全体は、参考文献<sup>16)</sup>ですでに示されたものとはほぼ同じであるが、変更した光源に関して次で詳しく述べる。Fig. 2 に装置全体の概要図を示す。計測に用いる基本波の光源には、 $1.55 \mu\text{m}$  帯波長可変レーザー (TLB-6600, New

Focus) を用いた。また、その出力は偏波保持 Er 添加シングルモードファイバー増幅器 (EDFA) で増大させた (CEFA-C-PB-HP, KEOPSYS)。波長可変幅は  $1.550 \mu\text{m}$  から  $1.565 \mu\text{m}$  の  $15 \text{ nm}$ 、中心波長は  $1.557 \mu\text{m}$  で、この範囲での出力は  $\approx 0.6 \text{ mW}$  であり、その出力を EDFA で増幅した。例として、波長  $1.550 \mu\text{m}$  の入出力特性を Fig. 3 に示す。最大励起電流のとき最大出力が  $586 \text{ mW}$ 、偏光比が  $20 \text{ dB}$  得られた。Fig. 4 は、EDFA の励起電流が  $5 \text{ A}$  のときの出力の波長依存性であり、5 回計測したときの平均値を示している。全波長領域で出力は  $589 \pm 12 \text{ mW}$  ( $\pm 2.0\%$ ) であった。この出力安定性に対する計測への影響は 3.1 節で考察する。この波長依存性は、種光の微弱な出力変化や、EDFA の増幅特性に依存しているものと推測される。次に、波長  $1.550 \mu\text{m}$  から  $1.565 \mu\text{m}$  の範囲のスペクトルを Fig. 5 に示す。各中心波長において、半値全幅が  $0.2 \text{ nm}$ 、約  $40 \text{ dB}$  の信号ノイズ強度比をもつ良好な単色光が得られている。

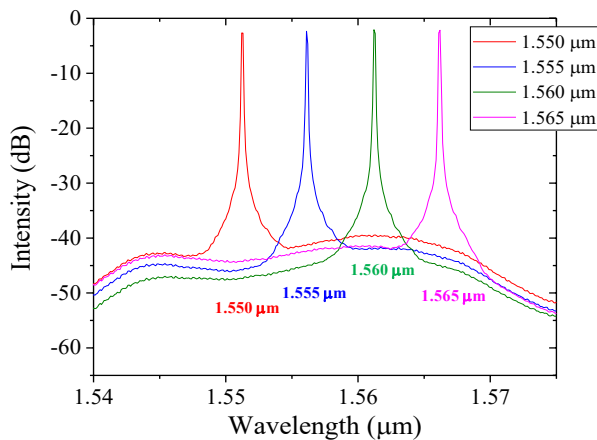


Fig. 5 Output spectra from the amplified ECDL at different wavelengths. The spectral resolution was 0.1 nm.

光源からの基本波は集光光学系を經由して、ビーム直径約  $23 \mu\text{m}$  で XY ステージ上のサンプルに照射した。このビーム直径の大きさが計測エリアとなる。また、サンプル下には偏光子 (厚さ  $0.2 \text{ mm}$ ) が挿入されている。入射ビームの直線偏光の方向は固定であるため、計測したい非線形係数に合わせて結晶と偏光子の置き方を調整する。サンプルと偏光子の下部は、ステージ窓として BK7 窓 (厚さ  $1.0 \text{ mm}$ ) が取り付けられている。サンプルで発生した第二高調波は計測ステージ下部の光電子増倍管 (R928, 浜松ホトニクス) によって検出され、オシロスコープでその信号強度を電圧値として計測する。検出信号は  $100 \text{ ms}$  の計測時間で平均化し、高周波ノイズ成分を除去した。波長可変光源とオシロスコープの制御はパソコンで行い、波長ごとの信号強度を記録した。

### 3. 計測結果および考察

#### 3.1 LN 結晶の計測と考察

$d_{33}^{\text{LN}}$  に対する第二高調波を計測するため、基本波の偏光方向と偏光子の透過方向を c 軸方向に合わせた。

$L$  が  $4.15 \text{ mm}$  で表裏がほぼ平行な LN 結晶を用い、無作為に選んだポイントに対して計測した。波長掃引に対する第二高調波の信号強度を Fig. 6 (a) に示す。曲線が計測値、破線が正弦関数の 2 乗によるフィッティング曲線である。結果、波長掃引によって第二高調波の出力が増減し、計測範囲内ではほぼ同じ振幅値が得られた。その最大値は  $0.19 \text{ V}$  であった。次に、この結果について考察を行う。

まず、レイリー長が計測に与える影響について考察する。入射ビームのレイリー長は  $2.8 \text{ mm}$  で、LN 結晶内では屈折率  $n_c$  が  $2.13$  であることの影響を考えると約半分の物理長  $1.31 \text{ mm}$  である。このため、 $L$  が  $4.15 \text{ mm}$  のときには第二高調波出力の低下が起これると考えられる。そこで別のサンプルとして、 $L$  が  $0.43 \text{ mm}$  の LN 結晶を計測した (Fig. 6 (b))。その振幅値は  $0.37 \text{ V}$  であり、 $L$  が  $4.15 \text{ mm}$  のときの振幅値  $0.19 \text{ V}$  と比べると約  $1.8$  倍大きかった。したがって、 $L$  が  $4.15 \text{ mm}$  のときの振幅値は、結晶長がレイリー長よりも長いことから、本来の値より小さく計測されたと考えられる。そのため、後の 3.3 節の非線形係数評価で用いる基準値としては、レイリー長より十分小さい  $0.43 \text{ mm}$  の  $L$  を用いたときの、 $0.37 \text{ V}$  を使用する。

次に、Fig. 6 の曲線上に重畳するフリンジについて考察する。 $L$  が  $4.15 \text{ mm}$  のとき (Fig. 6 (a)) の曲線上にみられるフリンジは明瞭でないが、BK7 窓と LN 結晶内で第二高調波が多重反射し、それらが重なっているものと推測され

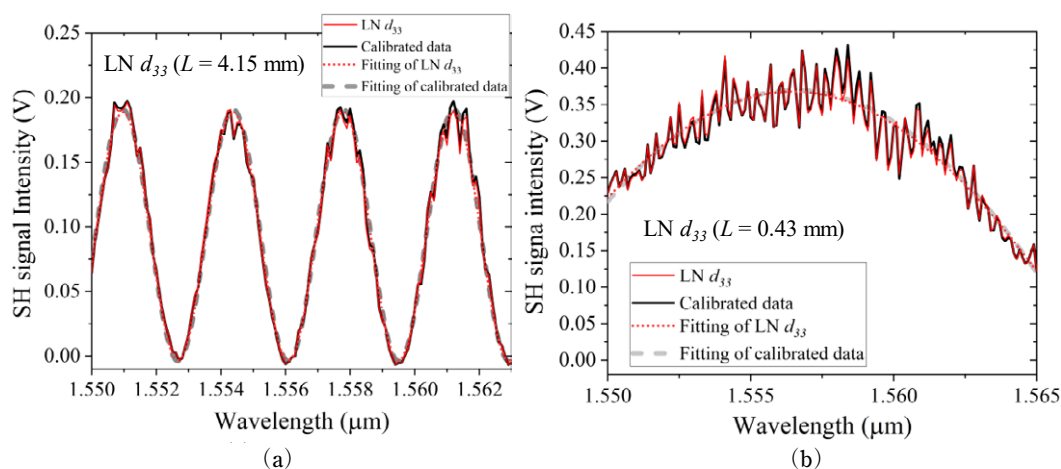


Fig. 6 Second harmonic output generated by the MgO-doped lithium niobate with a thickness of (a)  $4.15 \text{ mm}$  and (b)  $0.43 \text{ mm}$ . The gray solid curve shows the measured data. The black solid curve indicates the calibrated data using the pump's input power. The curve plotted using the dotted line is the fitted curve based on the use of a square sinusoidal function.



Table 2 Comparison of the fitted residuals and the maximum fitted values of the second harmonic using a least-squares method.

LN $d_{33}$	$L = 4.15$ mm		$L = 0.43$ mm	
	Measured data	Calibrated data	Measured data	Calibrated data
Sum of absolute residual error	0.80	0.79	2.74	2.91
Maximum value of fitting curve	0.189 V	0.191 V	0.368 V	0.369 V

る。一方、表面傾斜 ( $0.3^\circ$ ) をもつ、 $L$  が  $0.43$  mm のときの結果 (Fig. 6 (b)) ではフリッジが顕著に表れ、その自由スペクトル領域 ( $FSR = c/2nl$ ,  $n$  は屈折率,  $l$  は厚さ) を計測すると、値は  $\approx 0.1$  THz であった。このとき  $nl$  は  $1.5 \times 10^{-3}$  となり、 $1.55 \mu\text{m}$  の  $\lambda$  に対する BK7 窓の屈折率 1.50 と厚さ 1.0 mm から、フリッジは BK7 窓内で第二高調波の多重反射が起きた影響だと考えられる。この影響は、将来的に BK7 窓に AR コーティングを施すことで抑制できると考えられる。一方、LN 結晶内での多重反射によって現れる  $0.14$  THz の FSR はほとんどみられない。これは、 $L$  が  $0.43$  mm の LN 結晶がもつ表面傾斜 ( $0.3^\circ$ ) によって、多重反射が抑制されているためと考えられる。

次にフィッティングの誤差について、最小二乗法の残差に着目して考察する。フィッティングに対する残差の絶対値の合計を Table 2 に示す。Fig. 6 (a) の計測値に対する結果と、Fig. 4 で波長  $1.550 \mu\text{m}$  の平均出力を 1 としたときの各波長の値の比をとり、その 2 乗を計測値にかけた補正值に対する結果を並べて示した。この結果から、厚さがあり、出力のピークが複数回現れる場合は残差が少なく、フィッティングでより正確な振幅値が得られることがわかる。

さらに、Fig. 4 で示した光源出力の波長依存性が、第二高調波発生に対して与える影響を考察する。Fig. 6 における計測値と上述の補正值の間には顕著な差がなく、またフィッティング曲線の振幅値も両者でほぼ一致する (Table 2)。 $L$  が  $0.43$  mm の場合でも同様の傾向が得られており、基本波出力の波長依存性が振幅値の推測値に対して与える影響は小さく、無視することができる。

### 3.2 DAST 結晶の計測と非線形係数相対評価

次に、DAST 結晶の  $d_{11}^{\text{DAST}}$  を用いた計測について述べる。今回用いたサンプルは、後に比較するために、単色光源を用いて計測した<sup>16)</sup> サンプルと同一の、厚さ  $0.6$  mm のものを使用した (Fig. 7)。 $d_{11}^{\text{DAST}}$  を用いた第二高調波を計測するため、基本波の偏光方向と偏光子の透過方向を  $a$  軸方向に合わせた。

Fig. 8 に、最も大きな振幅値が得られた計測箇所 (Fig. 7

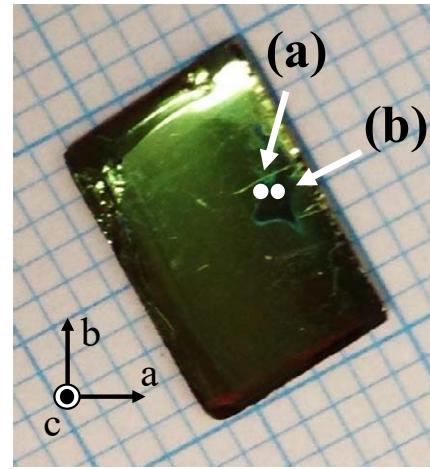


Fig. 7 Measured DAST crystal. Left dot (a) shows the measurement point of Fig. 8 and right dot (b) shows the measurement point of Fig. 9.

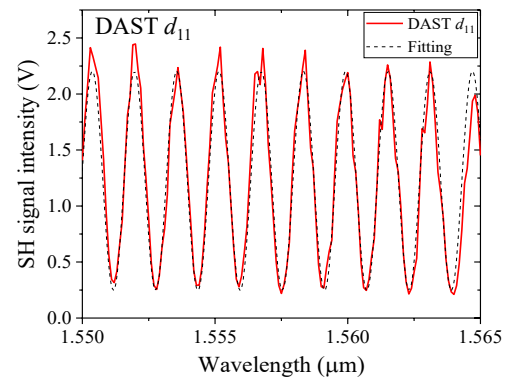


Fig. 8 Second harmonic output at the measurement point of Fig. 7 (a). The dotted line is a fitting curve based on the use of a square sinusoidal function.

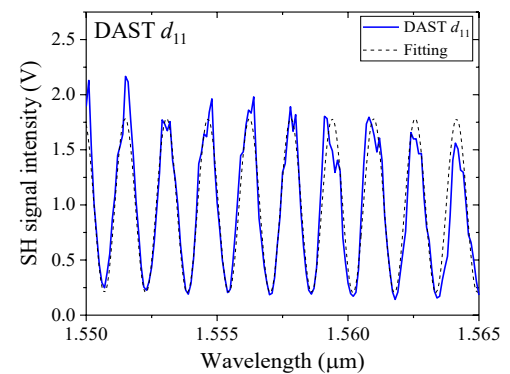


Fig. 9 Second harmonic output at the measurement point of Fig. 7 (b). The dotted line is a fitting curve based on the use of a square sinusoidal function.

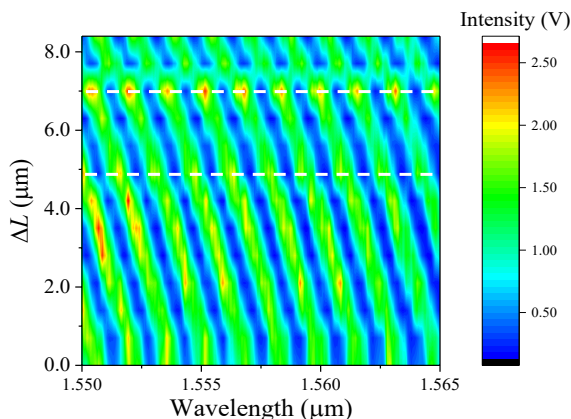


Fig. 10 Output mapping of a second harmonic signal along  $d_{11}^{\text{DAST}}$  as a function of tuning wavelength and the difference of the sample thickness  $\Delta L$ . The dotted line at  $\Delta L = 7.0 \mu\text{m}$  and  $\Delta L = 4.9 \mu\text{m}$  means cross sectional line of Fig. 8 and Fig. 9, respectively.

(a) での結果を示す。さらに、Fig. 9 に平均的な振幅値が得られた計測箇所 (Fig. 7 (b)) での結果を示す。Fig. 8 は、後の Fig. 10 で示す  $\Delta L$  が  $7.0 \mu\text{m}$  のときの強度断面図、Fig. 9 は  $\Delta L$  が  $4.9 \mu\text{m}$  のときの強度断面図をそれぞれ表す。これらの計測結果には、基本波入力の波長依存の補正を行っている。結果、DAST 結晶は LN 結晶と比べて基本波と第二高調波の屈折率差が大きく、かつ、より厚さがあることから、同じ波長可変範囲で出力増減の回数が多くなることがわかる。結果にみられる微細な波形のひずみは、3.1 節で考察したように、BK7 窓による影響と考えられる。一方、波長ごとの振幅値の大きさの違いは、結晶内部の微小な不均一性か、使用した光学部品の波長特性の変化による影響だと推測される。なお、式 (2) の係数部分の分母に屈折率があるため、振幅値は屈折率波長分散の影響を受けるが、その変量は本計測の波長可変範囲内で十分小さい。

Fig. 10 は、第二高調波出力強度を掃引波長と DAST の厚さ変化量でマッピングした図である。縦軸はステージ上を一次元にスキャンしたときの DAST の厚さ変化量を表しており、ステージの移動距離と DAST 結晶の表面傾斜 ( $0.20^\circ$ ) から算出した。結果にみられる縞状の強度分布は、結晶厚と波長掃引で現れる周期的な強度分布である。縞状分布のピッチは基本波と第二高調波の屈折率差で決まり、屈折率差が大きいほどピッチが狭くなり、かつ縞のパターンが水平に近づく。逆に屈折率差が小さい場合は、縞のピッチは広く、またパターンは垂直に近づく。

次に、非線形係数の相対評価について述べる。Fig. 8 および Fig. 9 の破線は、それぞれ計測データを正弦関数の二

Table 3 Measured  $d_{11}^{\text{DAST}}$  values in this experiment and comparison with previously reported values<sup>16)</sup>. The value of  $d_{33}^{\text{LN}}$  was used as a reference.

	This work (pm/V)	Previous work (pm/V)
DAST $d_{11}$ ( $\Delta L = 7.0 \mu\text{m}$ )	360	303

乗でフィッティングした結果を表している。結果として、 $\Delta L$  が  $7.0 \mu\text{m}$  のときの振幅値は  $2.21 \text{ V}$ 、 $\Delta L$  が  $4.9 \mu\text{m}$  のときの振幅値は  $1.78 \text{ V}$  が得られる。

振幅値から非線形係数の比を算出するには、式 (2) から導出した以下の式を用いる<sup>16)</sup>。

$$\frac{d}{d_{\text{Ref}}} = \sqrt{\frac{V}{V_{\text{Ref}}} \times \frac{n'}{n'_{\text{Ref}}}} \quad (6)$$

$$n' = n_o^2 n_{2\omega} (n_{2\omega} - n_o)^2 \quad (7)$$

ここで、 $d$  は評価対象とする  $d_{11}^{\text{DAST}}$ 、 $V$  は第二高調波出力の振幅値、添え字の Ref. は基準を表す。本論文では相対評価の基準値となる非線形係数を  $d_{\text{Ref}} = d_{33}^{\text{LN}}$  とし、その値は以前<sup>16)</sup> の計測で得られた  $d_{33}^{\text{LN}} = 20.8 \text{ pm/V}$  とする。 $V_{\text{Ref}}$  は 3.1 節で得られた  $0.37 \text{ V}$  を用いる。屈折率は、それぞれの結晶の、波長掃引範囲の中心波長  $1.557 \mu\text{m}$  の値を使用する。これらの値を用いて、透過率を考慮した非線形係数の相対評価を行う。

Table 3 に  $d_{11}^{\text{DAST}}$  を相対評価した結果を示す。このとき、非線形係数の評価にはより大きい値の  $2.21 \text{ V}$  を用いる。同時に、比較のために単色光源による計測結果<sup>16)</sup> も示す。サンプルは同一のものを使用しており、計測範囲もほぼ同じ領域を計測した。結果、単色光源を用いたときと比べて、大きい値が得られた。その差は、以前の計測では結晶上の数 mm 角の範囲で値が平均化されている<sup>16)</sup> ことに対し、波長掃引による計測では、ビームサイズで決まる直径  $\approx 23 \mu\text{m}$  の範囲での値を計測していることによるものと推測される。

以上のように、波長掃引型の計測では、サンプル形状に依存せず、特定の位置での非線形係数が計測できた。また、マッピングをとることで、結晶内での分布が計測できた。

#### 4. ま と め

本研究では CW 波長可変  $1.55 \mu\text{m}$  帯レーザー光源を用いて、LN 結晶を基準とした DAST 結晶の非線形係数相対評価を行った。結晶品質が安定した LN 結晶の  $d_{33}^{\text{LN}}$  に対する振幅値は  $0.37 \text{ V}$  であり、それを  $d_{33}^{\text{LN}}$  が  $20.8 \text{ pm/V}$  である際の基準値としたとき、DAST 結晶の非線形係数は最大で  $360 \text{ pm/V}$  となった。

光源としてCW波長可変レーザーの出力をEDFAで増大したものを用いることで、十分な第二高調波の出力が得られ、さらに安定した計測が可能であることが示された。また、振幅値はフィッティングによる導出が適当であり、基本波の波長依存性の影響はほぼ現れないことが示された。さらに、振幅値はレイリー長とサンプルの光学厚さに影響を受けることがわかった。より長いレイリー長の光学系を構築することによって、計測対象となる結晶の多様な厚さに対応できると考えられる。また、波長可変光源の設計をする際に重要な、波長可変幅に対するサンプル厚の下限値の関係を示した。

非線形係数計測装置の光源を単色光源と波長可変光源の2種類を使い分けることによって、サンプルの形状や計測範囲に対して自由度が高い非線形係数計測が可能である。サンプル形状に関しては、表面傾斜があれば単色光源、曲面や平面の場合は波長可変光源を用いればよい。計測の手順は両者とも同様であり、さらに光源はオールファイバーシステムで切り替えが容易なため、簡便で迅速な計測が可能である。

本研究に助言いただいた熊野勝文氏（東北大）、結晶成長、加工にご協力いただいた齋藤美紀子氏（理研）、庄司鉄雄氏（理研）、および当チーム研究員に深く感謝いたします。本研究は、日本学術振興会科研費（16766870）の支援を受けて行われました。

## 文 献

- 1) S. R. Marder, J. W. Perry and W. P. Schaefer: *Science*, **245** (1989) 626-628.
- 2) M. Jazbinsek, L. Muttter and P. Günter: *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **14** (2008) 1298-1311.
- 3) M. Walther, K. Jensby, S. R. Keiding, H. Takahashi and H. Ito: *Opt. Lett.*, **25** (2000) 911-913.
- 4) S. Sohma, H. Takahashi, T. Taniuchi and H. Ito: *Chem. Phys.*, **245** (1999) 359-364.
- 5) H. Hashimoto, Y. Okada, H. Fujimura, M. Morioka, O. Sugihara, N. Okamoto and R. Matsushima: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** (1997) 6754-6760.
- 6) M. Fujiwara, K. Yanagi, M. Maruyama, M. Sugisaki, K. Kuroyanagi, H. Takahashi, S. Aoshima, Y. Tsuchiya, A. Gall and H. Hashimoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45** (2006) 8676-8685.
- 7) M. Fujiwara, M. Maruyama, M. Sugiuchi, H. Takahashi, S. Aoshima, R. J. Congdell and H. Hashimoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46** (2007) 1528-1530.
- 8) C. Bernerd, P. Segonds, J. Debray, T. Notake, M. Koyama, H. Minamide, H. Ito and B. Boulanger: *Opt. Lett.*, **43** (2018) 1818-1821.
- 9) K. Kawase, M. Mizuno, S. Sohma, H. Takahashi, T. Taniuchi, Y. Urata, S. Wada, H. Tashiro and H. Ito: *Opt. Lett.*, **24** (1999) 1065-1067.
- 10) H. Ito, K. Suizu, T. Yamashita, A. Nawahara and T. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46** (2007) 7321-7324.
- 11) K. Suizu, K. Miyamoto, T. Yamashita and H. Ito: *Opt. Lett.*, **32** (2007) 2885-2887.
- 12) K. Miyamoto, H. Minamide, M. Fujiwara, H. Hisamoto and H. Ito: *Opt. Lett.*, **33** (2008) 252-254.
- 13) K. Miyamoto, S. Ohno, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hisamoto and H. Ito: *Opt. Express*, **17** (2009) 1714-1716.
- 14) T. Notake, K. Nawata, H. Kawamata, T. Matsukawa, F. Qi and H. Minamide: *Opt. Express*, **20** (2012) 25850-25857.
- 15) P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenoff and C. M. Savage: *Phys. Rev. Lett.*, **8** (1962) 21-22.
- 16) 小山美緒, 野竹孝志, 伊藤弘昌, 南出泰亜: レーザー研究, **45** (2017) 773-778.
- 17) A. Yariv: 光エレクトロニクス, 原書5版(丸善株式会社, 2000). p. 408.