

調整可能な連続波光パラメトリック発振器のスペクトル範囲の進歩

Jaroslav Sperling^{*a}, Niklas Waasem^a, Ronja Gärtner^a, Maik Schubert^b, Gunnar Elgcróna^c,
Korbinian Hens^b

^aHübner Photonics GmbH, Wilhelmine-Reichard-
Strasse 6, 34123 Kassel, Germany ^bHübner GmbH & Co KG, Heinrich-Hertz-
Strasse 2, 34123 Kassel, Germany ^cCobolt AB, Vretenvägen 13, 17154 Stockholm, Sweden

梗概

ターンキーシステムとしての実装に実用化が求められている最先端の広範囲に調整可能な連続波光パラメトリック発振器の原理、設計上の課題、性能の特長、および現在の制約について説明します。いくつかの単一周波数レーザーポンプ光源に適応できる柔軟な2段階の設計コンセプトを採用し、450nmから3500nmまでの波長範囲をほぼシームレスにカバーできる方法を実証します。ダイヤモンドの新しいカラーセンターの基礎研究など、量子技術の分野における新たな重要な応用例が、例示的に示されています。

キーワード: 波長可変レーザー、光パラメトリック発振器、量子エミッター、カラーセンター

1. はじめに

光パラメトリック発振器 (OPO) 技術に基づく光源は、従来のレーザーと比較して、動作波長の驚くべき多用途性を提供します [1]。これは、OPO の原理が、適切なレーザー利得媒体での誘導放出ではなく、非線形光学材料でのパラメトリック変換と呼ばれるプロセスに依存しているためです。図 1 に示すように、OPO プロセスは、入ってくる高エネルギーのポンプ光子を、通常、それぞれシグナル光子とアイドラー光子と呼ばれる、より低エネルギーの2つの光子に分割するものとして認識できます。それは、光子エネルギーと光子の運動量 (位相整合条件) の保存原則の影響を受けますが、それ以外の点では、少なくとも理論上は基本的な制約によって制限されません。言い換えれば、2つの条件が満たされている限り、シグナル (およびアイドラー) の動作波長を自由に選択できます。



図 1. 左: 4準位利得媒質におけるレーザー発振の概略図。このプロセスは、反転分布 (光ポンピングなどによって維持される) と誘導放出に基づいています。右: 非線形媒体における光パラメトリック変換の概略図。直感的に説明すると、ポンプレーザー光子は、一般にシグナル光子 (ω_s, k_s) とアイドラー光子 (ω_i, k_i) と呼ばれる、よりエネルギーの低い光子のペアに分割されます。ポンプ波、シグナル波、およびアイドラー波のこのいわゆる三波混合は、使用される非線形結晶の二次非線形性に密接に関係しています。このプロセスは光子エネルギー ($\omega_p = \omega_s + \omega_i$) と光子の運動量 ($k_p = k_s + k_i$) の変換の影響を受けますが、それ以外の場合、シグナル/アイドラーペアの動作波長は原理的に自由に選択でき、継続的にスペクトル調整が為されます。

^{*})jaroslav.sperling@hubner-photonics.com

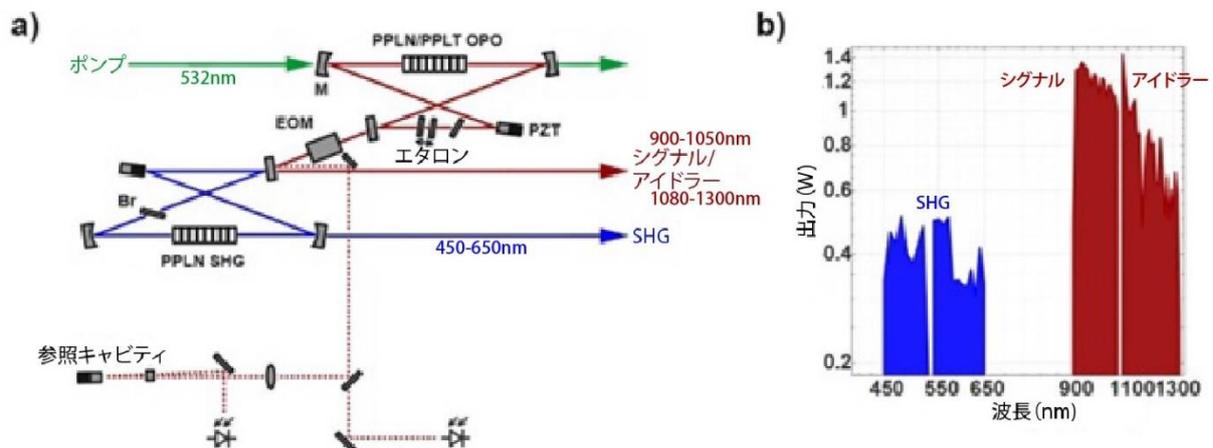


図 2. 可視スペクトル範囲をカバーする史上初の市販 CW OPO 設計内のビーム経路の概略図。最初のステップ (OPO) では、532nm レーザーが非線形結晶を励起して、近赤外スペクトル範囲のシグナル光子(900~1050nm)とアイドラー光子(1080~1300nm)を生成します。2段階のエタロンプロセスを使用した波長選択とそれに続く第2高調波発生(SHG)により、シグナル光子またはアイドラー光子のいずれかが可視範囲のスペクトルに変換されます。緑色の矢印はポンプレーザービームを示し、赤色の矢印はシグナル/アイドラービーム(任意の割り当て)を示し、青色の矢印は周波数2倍のシグナル/アイドラーのビームパスを示します。(b)出力と波長。

OPO の概念は、レーザー自体の発明の直後に実験的に実証されました[2]が、実用的なデバイスの登場は遅れており、これは特に連続波モード(CW OPO)で動作するシステムに当てはまります。ごく最近になって、新しいタイプの非線形結晶の出現と、一方で適切な高性能ポンプレーザーの入手可能性の増加によって、広範囲に調整可能な CW OPO の実現が促進されました。以下に示すように、CW OPO はこれにより、前例のない波長範囲と優れた動作特性[3]を備えた、広範囲に調整可能なコヒーレント放射源に成長しました。これにより、適切な代替品の技術的複雑さ、またはその欠如によって妨げられていたであろう実験が可能になります[4]。

2. 幅広く調整可能な CW OPO: 実際の設計上の考慮事項

レーザーとは異なり、OPO はポンピングにコヒーレント光を必要とし、パラメトリックプロセスの性質上、生成される出力波長はいずれもポンピング波長より長くなることに注意してください。その結果、可視スペクトル範囲全体で動作することを目指す CW OPO デバイスは、CW 紫外 (UV) ポンプ光源を必要とするか、あるいは追加の周波数変換ステージを採用する必要があります。UV 波長での励起は魅力的な単純さにもかかわらず、これまでのところ、長波長励起と主 OPO 出力の第2高調波変換(SHG)を組み合わせた2段階の実装のみが実用的であることが証明されています。そのため、ポンプレーザー光源に対する要件は、優先シングルモード動作、ノイズ特性、ビーム品質、ビーム指向安定性の点で厳しいものになります。現在、当社は高性能ダイオード励起ソリッドステート(DPSS)レーザー(より低いポンプパワーの場合)または高性能ファイバーレーザーベースのソリューション(より高いポンプパワーの場合)に頼っています。

十分な変換効率を達成するために、非線形媒体は共振器キャビティ(通常、その特徴的な形状にちなんで名付けられたボウタイキャビティ)内で動作し、複数の経路が往復ごとにゲインを増加させるようにします。動作的に安定したターンキーシステムには、いわゆる「単一共振」設計のみが実現可能である、と言っても過言ではないようです。システム全体の特定の動作波長に対して、一次 OPO キャビティは、特定のシグナル波長または特定のアイドラー波長に「共振」して動作します。1つの波(シグナルなど)を OPO キャビティ内で共鳴循環させたまま、対応する波(アイドラーなど)を抽出して、その後の波長変換を行うことができます。実際には、実効的な OPO 共振器長を積極的に(循環波長の整数倍まで)安定させる必要があります。この目

的を達成するために、パウンドドレバーホール（PDH）またはサイドフリンジロック安定化スキームを、有効 OPO キャビティ長の制御を可能にする piezo 素子搭載キャビティミラーと組み合わせて利用できます。

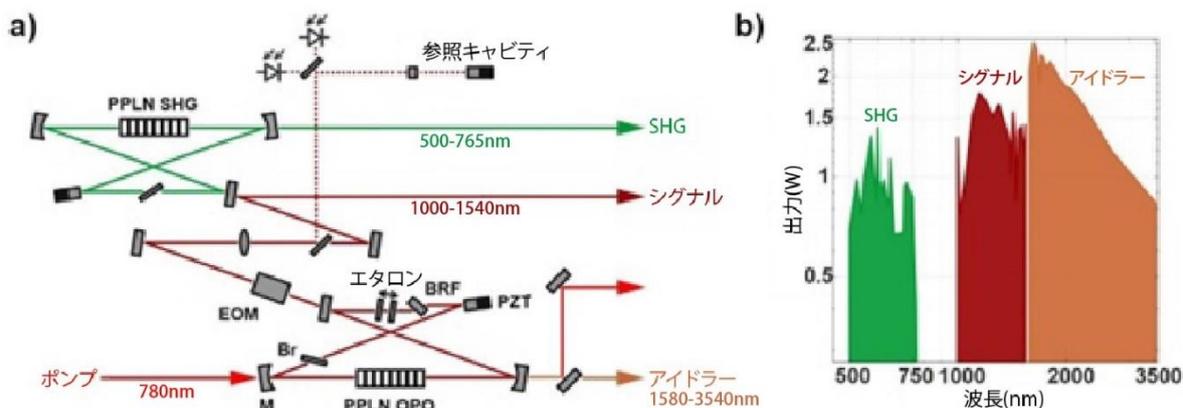


図 3.最適化された出力で可視範囲内でギャップのない調整を行うように調整された CW OPO システム内のビーム経路の概略図。780nm レーザーを使用して非線形結晶を励起し、1000~1540nm の範囲のシグナル波と 1580~3540nm の範囲のアイドラー波を生成します。一次 OPO キャビティはシグナル波に対して共振状態に保たれます。2 段階のプロセス(エタロン、複屈折フィルター)とその後の第 2 高調波発生(SHG)による波長選択により、SHG が 500~765nm の範囲に変換されます。赤い矢印はポンプレーザービームを示し、暗赤色(オレンジ)の矢印はシグナル(アイドラー)ビームを示し、緑色の矢印は周波数 2 倍のシグナルのビームパスを示します。(b)出力と波長。

共振発振に対して単一（シグナルまたはアイドラー）OPO キャビティモードのみをサポートされるようにするには、モード選択性のキャビティ内光学素子の組み合わせを使用する必要があります。2 つのエタロン(自由スペクトル範囲が明らかに異なる)を組み合わせる使用するか、エタロンと複屈折フィルター要素を組み合わせる使用すると、最良の結果が得られます。どちらの場合も、光学要素はキャビティ内のビーム経路に沿って直列に配置されています。

図 2 は、可視スペクトル範囲をカバーし、概説した考慮事項に沿って設計された、広範囲に調整可能な CW OPO システムの概略図を示しています。特に、商用ターンキーシステムとして利用できるこの種の最初のもので、最初の（単一共振）キャビティでは、532nm CW レーザー光を使用して非線形結晶（周期分極反転ニオブ酸リチウムまたはタンタル酸リチウム）をポンピングし、近赤外スペクトル範囲（それぞれ 900~1050nm および 1080~1300nm）のシグナル波とアイドラー波を生成します。システム設計には、結晶の分極周期の機械的選択と結晶温度の制御による動作シグナル/アイドラー波長の大きな事前選択、および 2 つのエタロンの組み合わせを使用したモードフィルタリングが含まれます。主に生成されたシグナルまたはアイドラー波は、SHG キャビティ内で可視範囲に変換され、450~525nm、540~650nm それぞれの同調範囲をカバーします。532nm 付近のいわゆる縮退ギャップを除いて、これは本質的に、1064nm にわたって OPO キャビティを調整する際にキャビティミラーを高反射から高透過に切り替える必要性を反映しており、波長範囲は真に連続的です。ポンプレーザーの特定の選択に応じて、可視範囲で最大 500mW の出力を達成できます(図 2 を参照)。

図 2 に示されているプラットフォームの明確な重要な性能特性は、450nm という短い波長への便利なアクセスを提供することですが、固有の縮退ギャップがギャップフリー調整プロトコルを必要とする実験設定にとっての欠点であることを強調することを躊躇しません。同様に、回折光学素子のマスタリングなどの用途において、より高い出力に対する悪名高い要求も存在します[5]。これにより、図 3 に示す、それに応じて適応された新しいスキームが推進されます。このスキームでは、780nm で 7W を供給するファイバーレーザーベースのポンプ光源を使用し

て、一次 OPO プロセスをマルチワット出力レベルまで効率的に駆動します。本質的に、OPO と SHG の両方の共振器レイアウトは、最適な OPO ポンプしきい値に一致し、SHG 変換率を最大 60% 以上まで最大化するように設計されています[6]。したがって、図 2 に示されているスキームとは対照的に、主要な概念的なアイデアは、シグナル波(1000~1540nm)の共振で主 OPO キャビティを常に動作させ、このシグナル波のみを SHG プロセスに供給することです。これにより、OPO キャビティミラーを切り替える必要がなくなるだけでなく、標準出力 1W で 500~765nm の波長範囲にわたってギャップのない調整が可能になります。私たちの知る限り、この設計は、波長範囲と出力の組み合わせに関して、前例のない調整可能な CW OPO パフォーマンスを実現します。システムのレイアウトは一般的であるため、例えば使用されるポンプレーザーのパワーアップまたは波長シフトに合わせてさらに最適化できることを指摘します。

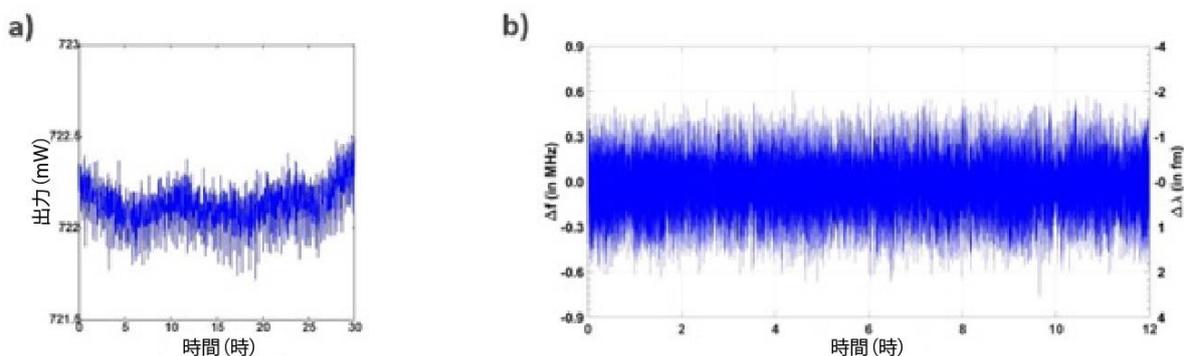


図 4.(a)図 3 に示す CW OPO 設計の 600nm 出力の変動。30 分のタイムスケールで測定。(b)閉ループ動作における、図 3 に示す CW OPO 設計の長期周波数安定性。高性能波長計と組み合わせたソフトウェアモジュールを使用すると、長時間にわたる ± 1 MHz の周波数安定性を達成できます。

3. パフォーマンスのハイライトとチューニング特性

2 段階の CW OPO 設計に含まれる各非線形プロセスは出力変動を増大させる傾向があるため、システム出力の安定性がしばしば厳しく検査されます。実際の例を挙げると、8 時間で 2%未満の長期出力安定性を備えた最先端の 532nm DPSS レーザーを使用すると、SHG 出力の振幅安定性 5%未満を達成できます。多くのアプリケーションにはこれで十分です。SHG 出力の一部が犠牲になる可能性があることを考慮すると、外部または内部の出力安定化スキームを呼び出すことで、このパフォーマンスを大幅に改善できます。前者に関しては、例えば外部閉ループ振幅変調器を単純な方法で使用すると、通常 1%未満の出力変動を達成できます(ただし、通常、利用可能な SHG 出力の 25%が犠牲になります)。内部電源安定化スキームはさらに優れた結果をもたらしますが、技術的にはかなり洗練されています。簡潔にするために、ここでは図 4a を強調して、図 3 に示した CW OPO 設計で達成可能な、実験的に測定された 0.5%未満の SHG ピークツーピーク出力変動を示します。

周波数安定性に関しては、提示された両方の設計は、可視および近赤外の両方の調整範囲全体にわたって、典型的な線幅 < 500 kHz で高品質の CW 出力を提供し、100m をはるかに超える典型的なコヒーレンス長に対応します。これにより、典型的な実験室条件では、時間にわたる < 150 MHz の長期周波数安定性が日常的に観察されます。要求が最も高いアプリケーションの場合、システムを閉ループモードで動作させることによって、つまり外部の波長測定デバイス(波長計)と組み合わせて動作させることによって、性能特性をさらに向上させることができます。この動作モードでは、達成可能な長期安定性は基本的に外部波長計デバイス自体の測定分解能に近づき、図 4b に示すように、数 MHz 程度にまで低下する可能性があります。

図 5 に、上で説明した調整可能な CW OPO 設計で実現できる、アプリケーションに合わせた調整プロトコルを示します。特に、示されているデータは、同時波長カバー範囲と波長ステップサ

イズの柔軟性という点で、一般的な基礎研究アプリケーションの困難な要件を反映しています。一方で、研究中の特定のサンプル（室温）のスペクトル帯域は幅広く非構造化されているため、徹底的なスペクトル特性評価には広いスペクトル範囲にわたる波長調整が必要になる場合があります。一方、単一の電子遷移（通常、極低温で数 GHz 幅程度）の同定と共鳴励起には、十分に狭いレーザー発光線幅と（サブ）pm 範囲での調整が必要です。幅広く調整可能な CWOPD は、波長調整用のさまざまなハンドルを提供しており、ほとんどの場合、そのような要求に適応できます。図 5 に示すように、一般的に適用される波長調整機構は、粗調整（基本的に結晶温度による）、段階的調整（共振器内エタロンのステップングによる）、および真の連続モードホップフリー調整（OPO キャビティ長のピエゾ走査による）です。参照。詳細については、図 5 のキャプションを参照してください。

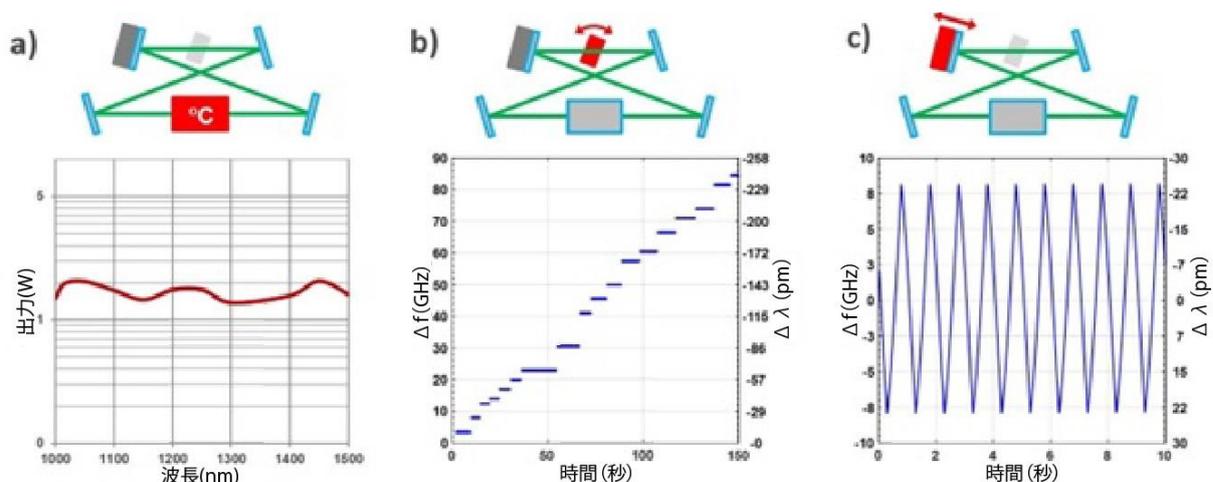


図 5.(a)粗スキャンで記録された、図 3 に示す CWOPD 設計のシグナル出力の値。(b)940nm の中心波長で共振器内エタロンを段階的に変化させることによる、図 2 に示す CWOPD の周波数調整。レーザー光出力の周波数は、2GHz(IR 範囲内)まで段階的に変更できます。(c)940nm の中心波長での真の連続(モードホップなし)スキャン。スキャン範囲は 10GHz を超え、中心波長に応じて最大 20GHz 以上に達することがあります。周波数変換後、可視波長範囲で 40GHz 以上のモードホップフリースキャンが実現します。

4. 応用例:ダイヤモンドのカラーセンター

量子技術では、想定されるデバイスアーキテクチャの多くは、励起イベントごとに正確に 1 つの光子を生成する量子システム、いわゆる単一光子エミッターに依存しています。このような単一光子エミッターを固体状態で実装すると、技術的に魅力的な利点が得られることが広く認識されています。最も有望な候補の中には、ダイヤモンド結晶内に顕微鏡的に局在化した不純物である「カラーセンター」があります。初期の注目は、ダイヤモンドの窒素空孔(N-V)センターに集中していました。窒素空孔(N-V)センターでは、窒素原子が空のサイトと一緒にあって、ダイヤモンド格子の 2 つの隣接する炭素原子を置き換えます。N-V センターはおそらく最も広く研究されている量子エミッターですが、IV 族元素(Si, Ge, Sn, Pb-V)に基づく別のクラスの欠陥が、外部ノイズの影響を受けにくいなどの特性がさらに改善される可能性があるため、最近かなりの関心を集めています[7]。

ダイヤモンドの光学活性センターの一覧は非常に多様ですが、それらのスペクトル特性は同様の物理原理によって支配されます。重要な要素は、エミッターの電子遷移と周囲の結晶ホストの格子振動の結合の程度です。このフォノン結合の強さは、純粋な電子遷移の鋭いゼロフォノン線(ZPL)に加えて、吸収および/または発光スペクトルにおけるフォノン側波帯(PSB)の出現によって推測できます。単一光子エミッターの集合の場合、スペクトルは、個々のサイトの局所的な微視的環境における不均一な静的変動によってさらに広がります。

従来の直接吸収測定による単一量子系のスペクトル特性評価はほとんど実現できません。研究者は通常、励起(レーザー)周波数を調整しながら量子エミッターの光子放出強度を測定するフォトルミネッセンス励起(PLE)分光法に依存しています。独特のスペクトル特性を考慮す

ると、単一エミッターの識別と特性評価には、周波数調整メカニズムの綿密な設計が必要です。説明のために、図 6 に、ダイヤモンド(Ge-V) [8]のゲルマニウム空孔センターに関する 2 つの研究からまとめられた実験データを示します。最近、室温条件下での単一光子放出など、量子技術アプリケーションにさまざまな魅力的な特性を提供することが提案されています。特に、これらの欠陥は反転対称性を備えているため、電場の局所的な変動の影響を受けません。図 6a は、室温条件で記録された Ge-V カラーセンターのアンサンブルの PLE スペクトルを示しています。これは、上で説明した CWOPD スキームの全粗調整範囲を利用して記録されており、温度調整とともに自動キャビティ光学系と結晶選択によって簡単にアクセスできます。この測定により、ZPL を約 602nm で共振駆動したときの最大カウントレートが明らかになりました。このデータは、Si-V と Ge-V のカラーセンターに関する比較研究からの許可を得て調整されています [8]。

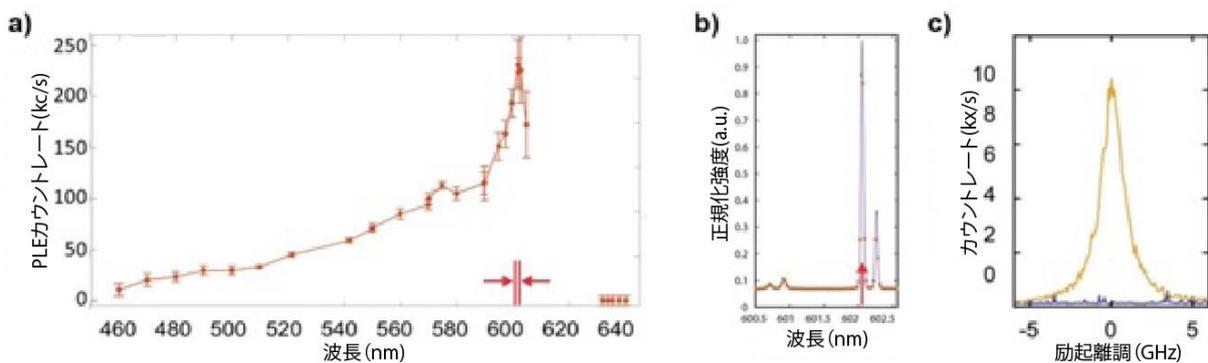


図 6.(a)0.25mW 励起パワーで記録された Ge-V センターの集合体のフォトルミネッセンス励起スペクトル。スペクトルは、励起波長を 450nm から 640nm に調整して室温で記録されます。赤い矢印は、図 b)に示す波長間隔を示します。参考文献[8]の許可を得て改変。(b)5K の温度で記録された単一の Ge-V センターの正規化されたフォトルミネッセンススペクトル。紫色の線は 4 つのガウスピークに適合します。図 c)に示すように、赤い矢印はゼロ励起離調を示します。参考文献[9]の許可を得て改変。(c)図 b)の最も顕著な遷移のフォトルミネッセンス励起スペクトル。共鳴励起を調整して記録。オレンジ色の線は追加の 532nm ゲートレーザーがオンになったときのシグナルを表し、青色の線はゲートレーザーがオフになったときのシグナルを表します。参考文献 9 の許可を得て改変。

図 6b に示すように、極低温条件下での単一 Ge-V センターのフォトルミネッセンススペクトルは、ZPL 発光の 4 本線の微細構造を明らかにします（強いスピン軌道結合により、基底状態と最初の励起状態が二重のスピン縮退を伴うエネルギー準位のペアに分割されます）。図 6b に示すスペクトルウィンドウは、図 6a の ZPL 付近のごく小さな部分を切り取ったものであり、アンサンブルではなく単一の Ge-V エミッターのシグナルを示していることに注意してください。

図 6c では、単一の Ge-V エミッターのスペクトルで最も顕著な特徴の共鳴蛍光特性が正確に特徴付けられています。この目的のために、CWOPD 励起波長は、波長計デバイスと連携した真の連続周波数調整によって、スペクトル共鳴全体にわたって約 ± 5 GHz の間隔内で調整されます。共鳴 PLE シグナルは追加の非共鳴励起時、つまり Ge-V センターがゲートレーザー (532nm) で追加励起された場合にのみ検出可能であることを強調しておく必要があります。532nm の光が果たす役割は、共鳴蛍光の開始と減少を制御するスイッチの役割です。実験結果については参考文献 [9]で詳細に説明されており、著者らは暗状態の存在によって観察されたダイナミクスを定量的に説明しています。

5. 展望

ここで紹介する広範囲に調整可能な CWOPD 設計は、波長範囲と出力の組み合わせに関して前例のない性能を提供します。これにより、基本的なシステム設計は、例えば使用されるポンプレーザーのパワーアップまたは波長シフトに合わせるなど、さらに最適化できるほど一般的にな

ります。この寄稿で説明できたことを期待しているように、CWOPO テクノロジーは、基礎研究および応用指向の研究における実験研究に付随するレーザー光源の中でよく認識される選択肢へと成熟することが期待されます。

著者らは、Rudolf Bratschitsch、Weibo Gao、Fedor Jelezko、Alexander Kubanek およびそのグループの支援と実りある議論に感謝します。

参考文献

- [1] Ebrahim-Zadeh, M., [Optical Parametric Oscillators], Handbook of Optics 2nd Ed. Chap. 22, McGraw-Hill, 22.1-22.72 (2001)
- [2] Giordmaine, J. A. and Miller, R. C., "Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO₃ at optical frequencies", Phys. Rev. Lett. 14(24), 973 (1965)
- [3] Sperling, J. and Hens, K., "Made easy: CW laser light widely tunable across the visible", Optik & Photonik, 13(3), 22-24 (2018)
- [4] Hens, K., Sperling, J., Waasem, N., Gärtner, R., and Elgrona, G., "Widely tunable CWOptical parametric oscillators: mastering the challenges posed in quantum research", Proc. SPIE 11269, Synthesis and Photonics of Nanoscale Materials XVII, 112690S (2020)
- [5] Hens, K., Sperling, J., Sherliker, B., Waasem, N., Ricks, A., Lewis, J. and Elgrona, G., "Lasers for holographic applications: important performance parameters and relevant laser technologies", Proc. SPIE 10944, Practical Holography XXXIII, 1094408 (2019)
- [6] Sowade, R., Breunig, I., Kiessling, J. and Buse, K., "Influence of the pump threshold on the single-frequency output power of singly resonant optical parametric oscillators", Appl. Phys. B 96, 25 (2009)
- [7] Bradac, C., Gao, W., Forneris, J., Trusheim, M. E., and Aharonovich, I., "Quantum nanophotonics with group IV defects in diamond", Nature Commun. 10, 5625 (2019)
- [8] Häußler, S., Thiering, G., Dietrich, A., Waasem, N., Teraji, T., Isoya, J., Iwasaki, T., Hatano, M., Jelezko, F., Gali, A. and Kubanek, A., "Photoluminescence excitation spectroscopy of SiV- and GeV- color center in diamond", New J. Phys. 19(6), 063036 (2017)
- [9] Chen, D., Mu, Z., Zhou, Y., Fröch, J. E., Rasmit, A., Diederichs, C., Zheludev, N., Aharonovich, I. and Gao, W., "Optical gating of resonance fluorescence from a single germanium vacancy color center in diamond", Phys. Rev. Lett. 123(3), 033602 (2019)