

高出力 BaWO₄ ラマンレーザにおける非調和効果を考慮したラマン利得のシミュレーション

Simulation of Raman gain including anharmonic effects for a high-power BaWO₄ Raman laser

須田潤¹, P. G. Zverev²
Jun Suda¹ and P. G. Zverev²

¹中京大学工学部電気電子工学科

²ロシア科学アカデミー・プロホロフ総合物理学研究所レーザ材料技術研究センター

¹Department of Electrical and Electronic Engineering, School of Engineering, Chukyo University

²Laser Materials and Technology Research Center, A.M. Prokhorov General Physics Institute
Russian Academy of Sciences

Abstract

The numerical simulation of Raman gain for a high-power-molecular-vibronic mode (926 cm⁻¹) including anharmonic effects (by both three phonon processes and dephasing ones) are presented for a high-power BaWO₄ Raman laser. In comparison with these results and experimental data of a BaWO₄ Raman laser, we found the BaWO₄ crystal is heated due to Stokes losses, which results in lowering of the Raman gain during the operation of a Raman laser by anharmonic effects. The obtained results will allow us to predict the variation of Raman gain with crystal temperature during the operation of a Raman laser.

1.はじめに

近年、灰重石構造の BaWO₄ 結晶は、ラマンレーザ用材料として非常に有力な特性[1-3]をもち、最近では、新しい圧力誘起相転移[4]についてラマン分光を用いて調べられている。Zverev の研究グループは、BaWO₄ 結晶は定常状態と過渡状態の両方で高ラマン利得[5]をもち、926 cm⁻¹ のラマンスペクトルはポンプ光波長 532nm に対してラマン利得係数が 36cm/GW[6]であり、灰重石構造の中で最も効率の高い値[7]をもつことを報告している。最近、我々は BaWO₄ 結晶のフォノンバンド計算とラマンスペクトルの温度依存性の実験を行い、分子振動モード(926cm⁻¹) のラマンスペクトル幅の温度依存性について、実験値との良好な一致(Fig. 2)を得るとともに、3次項の *down-conversion*(Fig.1(a))と4次項の *dephasing*(Fig.1(b))の非調和プロセスに起因することを報告した[8]。また、このモードのラマンスペクトル幅の狭帯化の温度特性と4次項の *dephasing* 効果はフォノンバンドギャップ(Fig. 3)と関係することを明らかにした[8]。

本研究では、実際のラマンレーザシステムにおけるラマン利得の非調和効果を調べることを目的として、高出力 BaWO₄ ラマンレーザにおけるラマン利得のシミュレーションを行ったので報告する。

2.解析方法

ポンプ光のパルス幅がフォノンの緩和時間より十分長い場合、定常状態におけるラマンレーザ（1 次のストークス誘導ラマン散乱光）の利得係数 g_{ss} は次式(1)で与えられる[9]。

$$g_{ss} = \frac{\lambda_p \lambda_s^2 N}{hc \pi n_s^2 \Delta\Omega_R} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega}, \quad (1)$$

ここで、 N は散乱中心の数、 λ_p と λ_s はそれぞれ、ポンプ光と散乱光の波長、 n_s は散乱光における媒質の屈折率、 $d\sigma/d\Omega$ はラマン散乱断面積、 $\Delta\Omega_R$ はラマン線幅(FWHM)である。本研究では BaWO₄ ラマンレーザの利得の温度依存性(10K ≤ T ≤ 300K)を式(1)により計算した。ここで計算条件は、 $\lambda_p=532\text{nm}$ 、 $\lambda_s=926\text{cm}^{-1}$ とし、線幅 $\Delta\Omega_R$ は Shell モデル計算によるフォノンバンド(Fig. 3)を用いた摂動計算により求めた[8]。さらに、 $\Delta\Omega_R$ 等の値を用い、ラマン散乱スペクトル強度の実測値を次式(2)[9]に fitting して、 $d\sigma/d\Omega$ を求めた。

$$I_s(\ell) \cong I(0) \exp \left\{ 2 \left[I_p \tau_p \ell \frac{8\pi^2 c^2 N}{\hbar \omega_s^3 n^2} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \right]^{\frac{1}{2}} - \pi c \Delta\Omega_R \tau_p \right\}, \quad (2)$$

ここで、 I_p と τ_p はポンプ光強度とポンプレーザのパルス幅、 ω_s はラマン散乱光の角周波数、 l は結晶のレーザの進行方向の長さを表し、本研究では $l = 31\text{mm}$ とした。

3.シミュレーション結果と考察

Fig.4 に利得係数 g_{ss} の温度依存性の計算結果を示す。非調和効果に起因した g_{ss} の温度変化はラマン線幅の温度変化(Fig.3)より大きいことがわかる。BaWO₄ 結晶におけるフォノンの緩和過程はフォノンバンドギャップ効果に起因する 4 次項の *dephasing* プロセスと 3 次項の *down-conversion* プロセスが存在する。Fig.4 に示す様に、 $T \geq 130\text{K}$ において 3 次項の効果のみを仮定した計算値と実験値とのずれが大きくなるが、3 次項の効果に 4 次項の *dephasing* プロセスの効果を加えることにより実験値をほぼ再現できることがわかった。これらの結果より、ラマンレーザのラマン利得の温度特性は、室温以下において *dephasing* プロセスが大きく影響する可能性を示した。また、本シミュレーションにより、実際にラマンレーザが動作している場合のラマン利得の温度変化を予測できると考えられる。

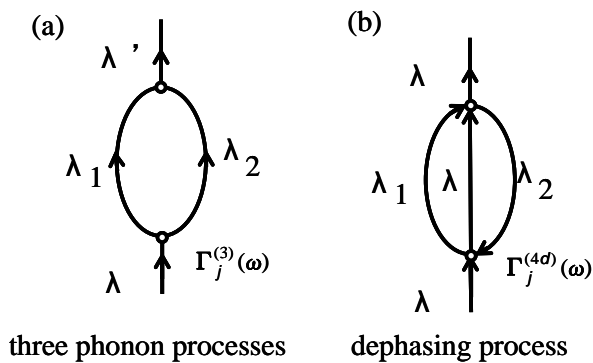


Fig.1 Feynman Diagrams for anharmonic effects [8].

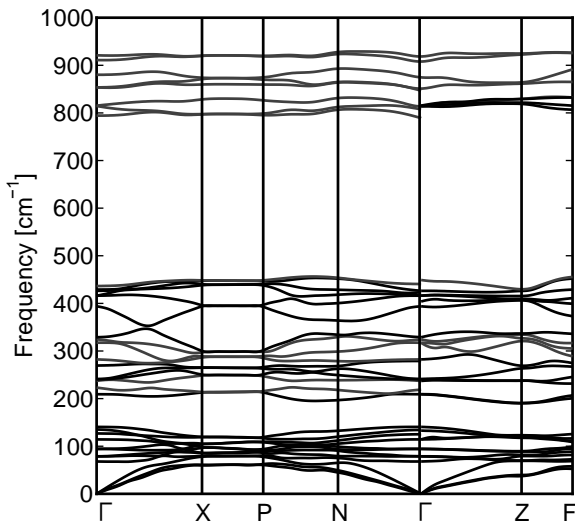


Fig. 3 The calculated phonon dispersion relations in BaWO₄ [8].

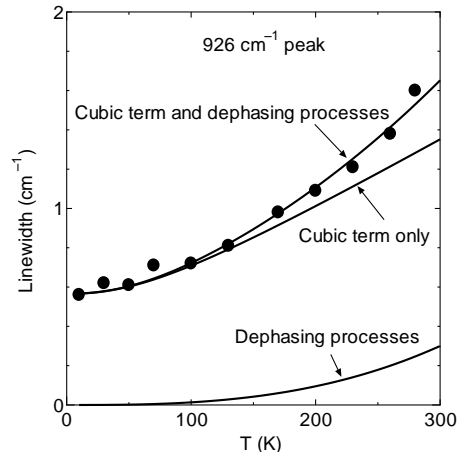


Fig. 2 The calculated (lines) and experimental (dots) Raman linewidth for a 926cm⁻¹ peak in BaWO₄ crystal [8].

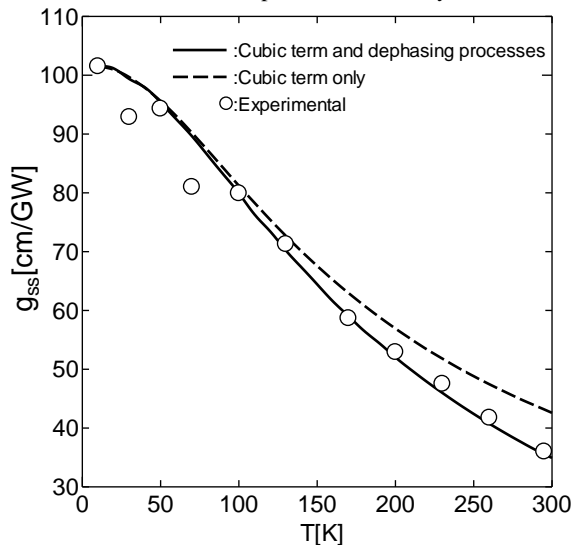


Fig. 4 Raman gain coefficient g_{ss} with increasing temperature.

参考文献

- 1) J. Suda and T. Sato, *J. Phys. Soc. Jpn* **66** 1707(1997).
- 2) P. G. Zverev, T. T. Basiev and A. M. Prokhorov, *Opt. Mater.* **11** 335 (1996).
- 3) J. Suda *et al*, *J. Spectro. Soc. Jpn.* **50** 65 (2001).
- 4) F. J. Manjón, D. Errandonea, N. Garro, J. Pellicer-Porres, P. Rodríguez-Hernández, S. Radescu, J. López-Solano, A. Mujica, A. Muñoz, *Phys. Rev. B* **74** 144111 (2006).
- 5) T. T. Basiev, V.V. Osiko, *Russ. Chem. Rev.* **75** 847 (2006)
- 6) P. G. Zverev, T. T. Basiev, A. A. Sobol, V. V. Skornyakov, L. I. Ivleva, N. M. Polozkov and V. V. Osiko, *Quantum. Electron.* **30** 55 (2000).
- 7) T. T. Basiev, A.A. Sobol, Yu.K. Voronko and P. G. Zverev, *Opt. Mater* **15** 205 (2000) .
- 8) J.Suda and P. G. Zverev, *Vib. Spectro.* **30** 55 (2012).
- 9) T. T. Basiev, A.A. Sobol, P. G. Zverev, V. V. Osiko and R. C. Powell, *Appl. Opt.* **38** 594 (1999) .