講　義

フレッシュマンのための現代光学—Ⅶ

SHG 光 学 (1)

立 野 公 男

(株)日立製作所中央研究所　〒185 国分寺市東恋が窪 1-280

(1993年9月9日受理)

Modern Optics for Freshmen—Ⅶ

SHG Optics (1)

Kimio TATSUNO

Central Research Laboratory, Hitachi Ltd., 1-280,
Higashi-koigakubo, Kokubunji 185

1. はじめに

SHG とは，second harmonic generation の略である．レーザー光のような，強い電磁波が光学結晶を通過すると分極が誘起される．誘起された分極の大きさは，印加電場に対して一般に非線形であり，分極の振動によって発生する電磁波は高調波を含む．SHG は，このうちの第二次高調波である．SHG の研究は，1960年にレーザーが出現した直後から行われているが[1,2]，最近，SHG を応用したコンパクトなブルー，グリーン光源の研究が再び活発化している．光ディスクの高密度化やレーザープリンタの高精細化など，レーザー応用光情報機器からの強いニーズがあるからである．一方，半導体レーザーの出力が向上して来たこと，KTP ($KTiOPO_4$) という良好な SHG 特性を持つ非線形光学結晶が出現したこと，また，LN ($LiNbO_3$)，LT ($LiTaO_3$)，KTP，あるいは有機結晶への導波路作成技術が向上してきたこと等にも起因している．

この背景から，本講の(1)では，SHG の原理から始め，波長変換効率，位相整合等 SHG の考え方の筋道を述べる．そして，KTP を具体例にとって位相整合角とその許容範囲，実効的非線形定数などの計算方法を説明する．本講の(2)では，SHG 光源の各種方式の説明と，光記録への応用などについて，最先端の研究例を紹介する．

2. SHG の原理

2.1 分極波と SHG

物質中を光が通過すると，光と物質の相互作用が生じる．物質は原子と分子とから構成されており，正の電荷を持った部分と負の電荷を持った部分からなる．通常は全体として電気的に中性であるが，これに電場が加わると正負電荷の間に変位が生じて双極子モーメントが発生する（図1）．これをベクトル $\boldsymbol{p}$ で表し，その向きを負電荷から正電荷にとり，大きさを電荷 e と正負電荷間の距離 $\boldsymbol{r}$ の積と定義すると，

$$\boldsymbol{p}=e\boldsymbol{r} \tag{1}$$

となる．単位体積中の原子の数を N とすると，分極（誘電分極—dielectric polarization）$\boldsymbol{P}$ は，単位体積当たりの双極子モーメントの総量，

$$\boldsymbol{P}=N\boldsymbol{p} \tag{2}$$

として与えられる．光の電場（電磁波）は高い周波数で正弦波的に振動しているので，それにより誘起された分極も同じ周波数で振動する．双極子が振動すると，そこから電磁波が発生する．一般には，分極 P と電場 E との関係は単純な比例関係にはなく，

$$P=\chi^{(1)}E+\chi^{(2)}E^2+\chi^{(3)}E^3\cdots \tag{3}$$

のような非線形の関係となる（図2）．光の角周波数を ω，E_1 を振幅とすると，光の電磁波 E は

$$E=E_1\exp(\mathrm{i}\omega t) \tag{4}$$

と書ける．分極波 P は，式(4)を(3)に代入して，

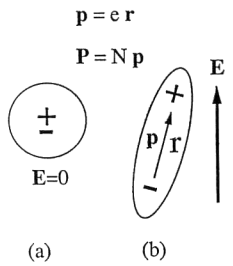


図 1　誘電体の分極．（a）印加電場がない時は正負電荷は分離しておらず，電気的に中性．（b）電場 E がかかると正負電荷は分離し，分極が発生する．発生した分極の方向と印加電場の方向は一般に異なる．

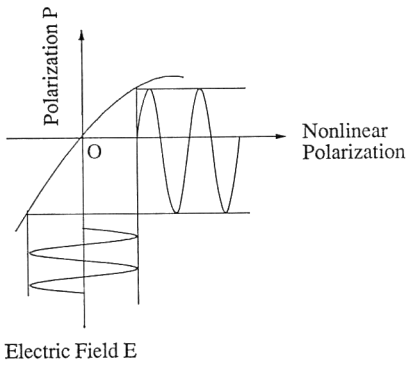


図 2　振動する電場（電磁波）E に対し，発生する分極は非線形であり，高調波成分を含む

$$P=\chi^{(1)}E_1\exp(\mathrm{i}\omega t)+\chi^{(2)}E_1\exp(2\mathrm{i}\omega t)+\chi^{(3)}E_1\exp(3\mathrm{i}\omega t)\cdots \tag{5}$$

これらの項のうち第二項が周波数 2 倍の SHG の項である．結晶は一般には異方性を持つので分極の生じやすい方向は，必ずしも印加された電場の方向と一致するとは限らない（図 1（b））．このため，分極と電場の関係はテンソルを介したベクトルの関係で表す必要がある．すなわち，非線形分極ベクトルの成分を P_x，P_y，P_z とし，電場の成分を E_x，E_y，E_z とすると，分極ベクトルと二次の電場ベクトルの関係は，非線形光学定数のテンソル，d_{ij}（$=\chi_{ij}/2$）を介して

$$\begin{bmatrix}P_x\\P_y\\P_z\end{bmatrix}=\begin{bmatrix}d_{11}&d_{12}&d_{13}&d_{14}&d_{15}&d_{16}\\d_{21}&d_{22}&d_{23}&d_{24}&d_{25}&d_{26}\\d_{31}&d_{32}&d_{33}&d_{34}&d_{35}&d_{36}\end{bmatrix}\begin{bmatrix}E_x\\E_y\\E_z\\2E_yE_z\\2E_zE_x\\2E_xE_y\end{bmatrix} \tag{6}$$

と表すことができる．ここに，d_{ij} の添字 i，j は

i	1	2	3
	x	y	z

j	1	2	3	4	5	6
	xx	yy	zz	yz	zx	xy
				zy	xz	yx

（7）

を意味する．このような非線形光学結晶中にレーザー光を通過させることによって生じた非線形分極波は，各場所で SH 波を発生させながら，レーザー光（基本波）と同じ位相速度で進む．この時の，基本波 $I(\omega_1)$ から SH 光 $I(\omega_2)$ への光強度の変換は，次の式（MKS 単位）で与えられる[3,4]．この式は，非線形分極波を介して結合する各周波数の電磁波の強度を，Maxwell の方程式を基に（結合波方程式）解いて得られるものである[12,13]．すなわち，分極の非線形項を右辺にとり，線形項を左辺の電場の項に含ませると，分極媒質中での Maxwell 方程式は，

$$\Delta E-\mu_0\varepsilon\frac{\partial^2E}{\partial t^2}=\mu_0\frac{\partial^2P_{\mathrm{NL}}}{\partial t^2} \tag{8}$$

となる．各々の電磁波を平面波とし，波長変換による減衰が十分小さく，変化もゆるやかであると近似すると，二次の微分項は無視できるので，

$$\frac{\partial E}{\partial z}=-\mathrm{i}\frac{2\omega}{k_2}\mu_0\varepsilon\chi^{(2)}E_1{}^2\exp(\mathrm{i}\,\Delta kz) \tag{9}$$

ここに，

$$\Delta k=2k_1-k_2 \tag{10}$$

であり，k_1，k_2 はそれぞれ，基本波，および，SH 波の波数ベクトルである．そこで，基本波と SH 波の相互作用長を L とし，この間で式（9）を積分し，二乗をとることで SH 波の強度を求めることができる（MKS 単位）．すなわち，

$$I(\omega_2)=\frac{2I^2(\omega_1)\omega_1{}^2L^2d_{\mathrm{eff}}{}^2}{A\varepsilon_0c^3n_\omega{}^2n_{2\omega}}\frac{\sin^2(L\Delta k/2)}{(L\Delta k/2)^2} \tag{11}$$

ここに，d_{eff} は d_{ij} の線形和で表される実効非線形定数，A はビームの断面積（$\sim\pi w_1{}^2$），n は屈折率，ε_0 は真空の誘電率，w_1 はビームウェストサイズ，c は真空中の光速である．sinc 関数の項が SHG における位相整合に関係しており，

$$\Delta k=0 \tag{12}$$

が位相整合条件，すなわち，運動量保存則である．式（12）が満足されれば，与えられた結晶に対して最大の変換効率が得られることになる．ここで，式（11）で表された SHG 出力の特性をまとめる（**図 3**）．

（1）　位相整合が成り立っておれば，基本波出力の二乗に比例，ビーム断面積に反比例，相互作用長 L の

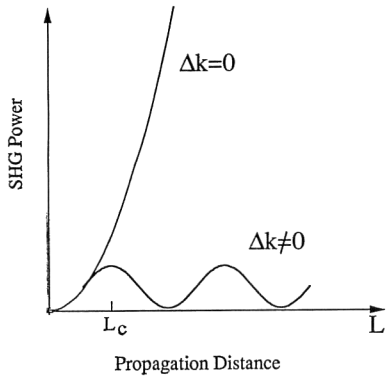


図 3　位相整合が成り立っている場合 ($\Delta k=0$) には，SH 出力は基本波と SH 波の相互作用長 L の二乗に比例する．位相整合が成り立っていない場合 ($\Delta k\neq 0$) には，SH 出力は相互作用長に対して周期的に変動し，周期はコヒーレント長の二倍となる．

二乗に比例する．

（2）　位相整合が成り立っていない場合には，正弦波状に変化する．これを Maker（メーカー）フリンジと呼び，非線形光学定数 d_{ij} の測定に利用する．

（3）　$d_{\mathrm{eff}}{}^2/n_\omega{}^2 n_{2\omega}$ が高効率 SH 結晶選択の指数の一つである．

以上により選ばれた SHG 結晶から高い変換効率を得るには，位相整合を成り立たせることが最も大切な要件であることが判明した．次にこれを説明する．

2.2　位 相 整 合

位相整合とは，基本波と SH 波の位相速度が等しいこと，すなわち，

$$v(\omega_2)=v(\omega_1)$$

である．しかし，結晶には，一般に波長分散があり，波長 λ（角周波数 ω）によって異なる屈折率 $n(\lambda)$ を持つ．したがって，SH 波 ω_2 の位相速度

$$v(\omega_2)=c/n(\omega_2) \tag{13}$$

$$\omega_2=2\pi c/\lambda_2,\quad (c：真空中の光速)$$

は通常，基本波 ω_1 の位相速度と異なる．このため，結晶中の異なる場所で生じた各々の SH 波の位相は互いにずれており，両者が重なった時には干渉効果によって打ち消し合いが生じる．その結果，その場所での SH 光の強度は低い．さらに離れた場所で生じた SH 波は基本波との位相ずれが少なくなり，強度は再び大きくなる．式(11)の分母，分子の L を消去すると，正弦波状となり，SH 強度が周期的に変化することを表している．最初のゼロ点から次のピーク点までの距離をコヒーレント長と呼ぶ．コヒーレント長 L_c は，sin 関数の位相項を $\pi/2$ とおいて求めることができる．すなわち，

$$L_c\Delta k/2=L_c\omega_1\{n(\omega_1)-n(\omega_2)\}/c=\pi/2 \tag{14}$$

ここで，式(10)と

$$k=n\omega/c$$

を用いた．したがって，

$$L_c=\lambda_1/4\{n(\omega_1)-n(\omega_2)\} \tag{15}$$

となる．

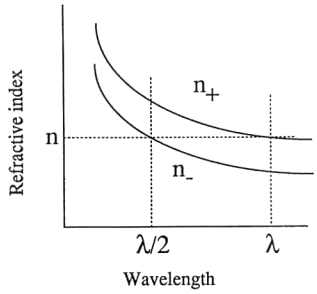


図 4　ある光の伝搬方向 (θ,ϕ) に対して与えられた複屈折の波長分散．$n_-(\lambda/2)=n_+(\lambda)$ で位相整合が成り立つ（type Ⅰ）．

以上のように，屈折率の波長分散カーブは，通常，単調であるため，このままでは結晶全長にわたって基本波と SH 波の屈折率が等しい条件は見つからない*1．ところが，異方性の結晶では複屈折性があり，光波の振動方向，すなわち，偏光方向によっては二つの屈折率が存在する．この性質を利用すると，**図 4** に示すように，位相整合条件を満足する光の伝搬方向 (θ_m,ϕ_m) を設定することが可能となる．つまり，結晶のある特定の方向にレーザー光を入射させると，特に高い SHG 効率が得られる．この方向は，**基本波と SH 波の位相速度が一致する方位**である．両波がこの方向に進めば干渉による打ち消し合いは生じない．これが位相整合条件である．

したがって，位相整合角を求めるには，光の伝搬方向に対する二つの屈折率を算出する必要が生じる．その準備として，屈折率楕円体を導入する[5]．今，x，y，z 方向にそれぞれ振動する光波が感じる屈折率を n_x，n_y，n_z とすると，異方性のない結晶（**図 5**(a)）では，屈折率楕円体は球であるが，異方性のある結晶では楕円体となる．$n_z>n_x=n_y$，である正の一軸性結晶（図 5(b)）では，楕円体はラグビーボール状であるため，x-y 面内で振動する光波の屈折率は，入射方向によらず一定であり，常光屈折率 n_0 という．これに対し，z 軸を含む面

*1　ただし，本講(2)で詳述するように，位相ずれの正負の符号をコヒーレント長ごとに反転し，位相のずれを補正しながら相互作用長を繋いで引き延ばす方法も考案されている[2]．これを疑似位相整合 (quasi-phase matching) と呼ぶ．

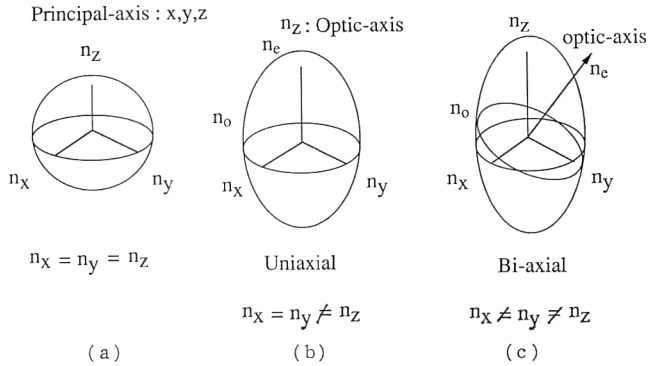


図 5　等方性，一軸性，二軸性結晶の屈折率楕円体．x，y，z は主軸．n_x は x 方向に振動する偏光が持つ屈折率．n_y は y 方向に振動する偏光が持つ屈折率．n_z は z 方向に振動する偏光が持つ屈折率．

内に振動成分を持つ光波は入射方向で異なる屈折率を持ち異常光屈折率 n_e という．この場合は，$n_x=n_y=n_0$，$n_z=n_e$ である．一方，二軸性の結晶（図5(c)）では，ラグビーボールをさらにイビツにしたような形をしているが，断面形状が円形となる切断面が二つ存在することが知られている．この断面に垂直な方向を光学軸という．このような軸は二つあるので二軸結晶という．一軸結晶は，二つの光学軸が一致している特別な場合である．

屈折率楕円体が与えられれば光波の任意の伝搬方向に対する屈折率 $n(\theta,\phi)$ を求めることができる．次にこれを説明する．

2.3　複屈折率の算出

結晶中での光の伝搬方向に対する屈折率は，Maxwell の方程式から導かれる波面法線のフレネルの方程式から算出される[5]．これは，

$$\frac{\gamma_x^2}{1/n^2-1/n_x^2}+\frac{\gamma_y^2}{1/n^2-1/n_y^2}+\frac{\gamma_z^2}{1/n^2-1/n_z^2}=0 \qquad (16)$$

で表される．ここに，γ_x，γ_y，γ_z は波数の単位ベクトル，すなわち，光の伝搬方向の方向余弦

$$(\sin\theta\cos\phi,\ \sin\theta\sin\phi,\ \cos\theta) \qquad (17)$$

を意味する．すなわち，光の進行方向 (θ,ϕ) と，結晶に固有の屈折率 (n_x, n_y, n_z) が与えられた時に，その進行方向の光波に対する屈折率 $n(\theta,\phi)$ を求めることができる．

式(16)は，n に対して二次の方程式であるから，一つの伝搬方向に対して二つの n の値が存在する．これが，複屈折である．今，位相整合を満足する結晶の方位，逆に言えば，結晶への光の入射角を求めるのが目的であるから，ある波長 λ に対する屈折率 n を光の進行方向 (θ,ϕ) に対して陽に表しておくと便利である[6]．そこで，

$$n=n(\lambda,\theta,\phi) \qquad (18)$$

$$X(\lambda)=1/\{n(\lambda,\theta,\phi)\}^2 \qquad (19)$$

$$\begin{aligned}B(\lambda)=[&-\gamma_x^2\{b(\lambda)+c(\lambda)\}\\&-\gamma_y^2\{c(\lambda)+a(\lambda)\}\\&-\gamma_z^2\{a(\lambda)+b(\lambda)\}]\end{aligned} \qquad (20)$$

$$\begin{aligned}C(\lambda)=[&\gamma_x^2 b(\lambda)c(\lambda)\\&+\gamma_y^2 c(\lambda)a(\lambda)\\&+\gamma_z^2 a(\lambda)b(\lambda)]\end{aligned} \qquad (21)$$

$$a(\lambda)=1/n_x(\lambda)^2$$
$$b(\lambda)=1/n_y(\lambda)^2$$
$$c(\lambda)=1/n_z(\lambda)^2$$

の各式を定義すると，式(16)は，二次方程式

$$\{X(\lambda)\}^2+B(\lambda)X(\lambda)+C(\lambda)=0 \qquad (22)$$

となる．これを $X(\lambda)$ について解いて，$n(\lambda,\theta,\phi)$ を求めると，

$$n_\pm(\lambda,\theta,\phi)=\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{-B(\lambda)\pm\sqrt{B(\lambda)^2-4C(\lambda)}}} \qquad (23)$$

となる．

さらに，基本波と SH 波の位相整合条件を求めるには，屈折率 n の波長分散も知る必要がある．屈折率楕円体が各主軸と交わる点の屈折率 (n_x, n_y, n_z) の波長分散は，良く知られたセルマイヤー (Sellmeier) の方程式と呼ばれる実験式で与えられる．すなわち，

$$\begin{aligned}n_x^2&=a_x+b_x\lambda^2/(\lambda^2-c_x)+d_x\lambda^2/(\lambda^2-e_x)\\n_y^2&=a_y+b_y\lambda^2/(\lambda^2-c_y)+d_y\lambda^2/(\lambda^2-e_y)\\n_z^2&=a_z+b_z\lambda^2/(\lambda^2-c_2)+d_z\lambda^2/(\lambda^2-e_z)\end{aligned} \qquad (24)$$

である．a_x〜e_z の各係数は，実験的に求められる[8-11]．

以上の手続きで与えられる二つの屈折率に対し，先述の位相整合条件を書き表すと以下のようになる．今，式(23)で与えられる基本波に対する二つの屈折率を $n_\pm(\lambda_1, \theta_m, \phi_m)$，SHG 光に対する屈折率を $n_\pm(\lambda_1/2, \theta_m, \phi_m)$ とすると，位相整合条件を満足する光の伝搬方向 θ_m は，

$$n_+(\lambda_1/2, \theta_m, \phi_m) = n_-(\lambda_1, \theta_m, \phi_m) \tag{25}$$

を解くことで求められる．これを，type Ⅰ の位相整合といい，図4から直感的に理解できる．これに対し，type Ⅱ の位相整合条件も存在し，

$$n_+(\lambda_1/2, \theta_m, \phi_m) = \{n_-(\lambda_1, \theta_m, \phi_m) + n_+(\lambda_1, \theta_m, \phi_m)\}/2 \tag{26}$$

で表される．すなわち，単一の直線偏光である SHG 光に対し，基本波は二つの偏光が寄与し，実効屈折率はそれぞれの屈折率の平均値となる．Type Ⅱ の位相整合は一種の和周波発生とみなすと理解しやすい．和周波発生の運動量保存則は，

$$k_3 = k_1 + k_2 \tag{27}$$

であり，書き替えると

$$\omega_3 n_3 = \omega_1 n_1 + \omega_2 n_2 \tag{28}$$

となる．SHG では，$\omega_1 = \omega_2$, $\omega_3 = 2\omega_1$ であるから，ただちに，式(26)が得られる．

一方，一軸結晶に対しては二軸結晶の特別な場合と考え，二つの屈折率のいずれか一方を常光線屈折率 n_0, 他方を異常光線屈折率 n_e と置けば一軸結晶の場合の位相整合条件を表すことができる．

以上述べてきたように，式(23)の光の伝搬方向に対する屈折率，および，式(24)のセルマイヤー方程式で与えられる屈折率分散を，式(25)，(26)の type Ⅰ，あるいは，type Ⅱ の位相整合条件にあてはめれば，与えられた結晶に対する位相整合角を算出することができる．以上が SHG の考え方の基本的な道筋である．式(23)～(26)の計算式をプログラム化することで，位相整合角計算のソフトを作ることができる．計算手続きをフローチャート式にまとめると**図6**のようになる．

2.4 KTP の場合の計算例

以上の SHG の考え方を代表的な SHG 結晶である KTP を例にとって計算した結果を紹介する[6-9]．式(6)で与えた非線形光学定数テンソルは，KTP の場合（単位は pm/V），

$$\begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 6.5 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 7.6 & 0 & 0 \\ 6.5 & 5.0 & 13.7 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

で与えられる．またセルマイヤーの方程式(24)における定数は

$a_x = 2.02989$　$a_y = 2.079195$　$a_z = 2.006239$
$b_x = 0.9737485$　$b_y = 0.9412874$　$b_z = 1.2965213$
$c_x = 0.04093072$　$c_y = 0.04595899$　$c_z = 0.04807691$
$d_x = 1.1048585$　$d_y = 0.9320789$　$d_z = 1.1329810$
$e_x = 100.0$　$e_y = 100.0$　$e_z = 100.0$

である．波長 1064 nm の基本波に対し，これらの定数を，type Ⅰ，および，type Ⅱ の位相整合条件に代入して計算した結果が**図7**である．

上記のように，位相整合条件は必ずしも主軸上で満たされるとはかぎらないので，非線形光学定数は，位相整合が成り立つ方向への写影をとる必要がある．この値は，実効的非線形光学定数 d_{eff} と呼ばれ，実際の変換効率を与えるものである．KTP 結晶では

$$d_{eff}(\text{type Ⅰ}) = (1/2)(d_{15} - d_{24})\sin 2\theta \sin 2\phi$$
$$d_{eff}(\text{type Ⅱ}) = -(d_{15} - d_{24})\sin 2\theta \sin 2\phi - (d_{15}\sin^2\phi + d_{24}\cos^2\phi)\sin\theta \tag{29}$$

で与えられる[6,10]．**図8**は計算結果である．位相整合条件を満たし，かつ最大の実効非線形光学定数が得られる方位は，KTP の場合，type Ⅱ，$\theta = 90°$, $\phi \sim 23°$ となる．ϕ の値は，KTP 結晶の製法（水熱合成法，フラックス

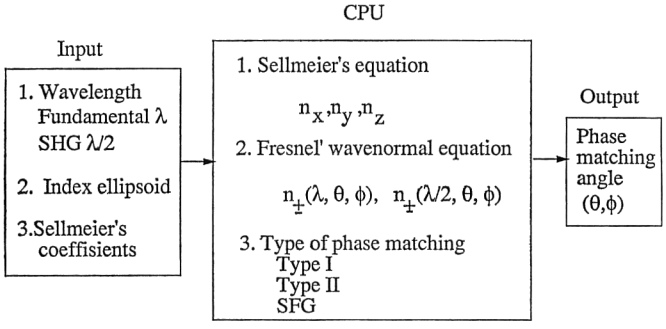


図 6　位相整合角計算のフローチャート．基本波の波長，屈折率楕円体，セルマイヤー方程式の各係数を入力し，フレネルの式の解から，二つの屈折率を求める．これを type Ⅰ，あるいは，type Ⅱ の位相整合条件にあてはめれば位相整合角を算出できる．

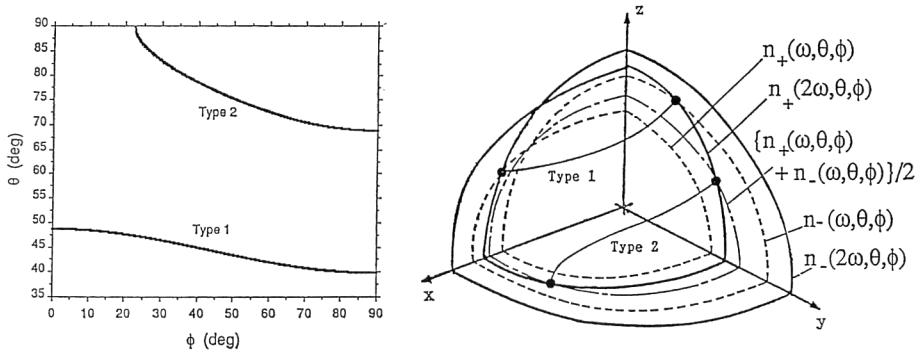


図 7　KTP の位相整合角の計算結果．Type Ⅰ，type Ⅱ の位相整合がそれぞれの線上で成り立つ．

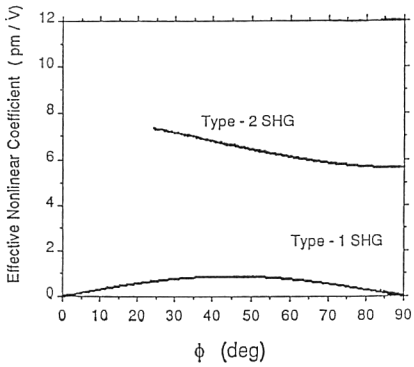


図 8　実効非線形光学定数 d_{eff} の計算，および，測定結果．Type Ⅱ の位相整合で，$\theta=90°$，$\phi\sim23°$ の時，実効非線形光学定数 d_{eff} は最大となる．

法）によってわずかに異なる．

次に，位相整合角の角度トレランスを考察する[10]．基本波の入射角が位相整合角からずれると，位相不整合量 Δk の変化を通じて SH 出力は下がる．式(11)によれば SH 出力は，Δk の変化に対して sinc 関数的に変化する．ここで，Δk は，type Ⅱ の位相整合に対しては

$$\Delta k=(1/c)[\omega_2 n_+(\omega_2,\theta,\phi)-\omega_1\{n_+(\omega_2,\theta,\phi)+n_-(\omega_2,\theta,\phi)\}] \tag{30}$$

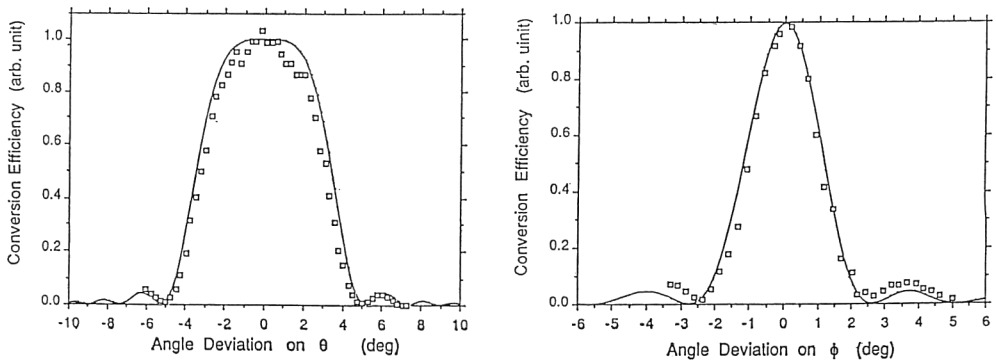
で表される．今，結晶の長さ L を固定 (1 cm) し，Δk が角度 θ，ϕ のみに依存すると考えて，Δk を θ_{m}，ϕ_{m} の近辺でテーラー展開すると θ については，

$$\Delta k=\Delta k(\theta_{\mathrm{m}},\phi_{\mathrm{m}})+\frac{\partial\Delta k(\theta_{\mathrm{m}},\phi_{\mathrm{m}})}{\partial\theta}\delta\theta+\frac{1}{2}\frac{\partial^2\Delta k(\theta_{\mathrm{m}},\phi_{\mathrm{m}})}{\partial\theta^2}(\delta\theta)^2+\cdots \tag{31}$$

ϕ については，

$$\Delta k=\Delta k(\theta_{\mathrm{m}},\phi_{\mathrm{m}})+\frac{\partial\Delta k(\theta_{\mathrm{m}},\phi_{\mathrm{m}})}{\partial\phi}\delta\phi+\frac{1}{2}\frac{\partial^2\Delta k(\theta_{\mathrm{m}},\phi_{\mathrm{m}})}{\partial\phi^2}(\delta\phi)^2+\cdots \tag{32}$$

となる．KTP の位相整合角は θ については 90 度であるから，式(23)における一次微分の項はゼロとなる．すな



(a) θ-direction: Noncritical phase matchig　　(b) ϕ-direction: Critical phase matchig

図 9　位相整合角近辺の SH 出力変化の計算結果．$\theta=90°$ のまわりは，noncritical phase matching のため許容幅が比較的広い．$\phi\sim23°$ のまわりは，critical phase matching のため許容幅が狭い．

わち，θ の変動に対しては SH 出力の変化は少ない．これに対し，ϕ 方向の変動に対しては敏感である．このような位相整合条件をそれぞれ，noncritical phase matching および，critical phase matching と呼ぶ．**図9**は計算結果と実験値をプロットしたものである．

文　　献

1) P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich: "Generation of optical harmonics," Phys. Rev. Lett., **7** (1961) 118.
2) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducing and P. S. Pershan: "Interaction between light waves in a nonlinear dielectric," Phys. Rev., **127** (1962) 1918.
3) D. A. Kleinman: "Theory of second harmonic generation of light," Phys. Rev., **128** (1962) 1761.
4) S. Singh: "Nonlinear optical materials," *Handbook of Laser Science and Technology, Vol. III, Optical Materials: Part 1*, ed. M. J. Weber (CRC Press, Inc.).
5) M. Born and E. Wolf: *Principles of Optics*, Sec. V, IX, XIV, 6th ed. (Pergamon Press).
6) J. Q. Yao and T. S. Fahlen: "Calculations of optimum phase match parameters for the biaxial crystal $KTiOPO_4$," J. Appl. Phys., **55** (1984) 65.
7) H. Ito, H. Naito and H. Inaba: "Generalized study on angular dependence of induced second-order nonlinear optical polarizations and phase matching in biaxial crystals," J. Appl. Phys., **46** (1975) 3992.
8) F. C. Zumsteg, J. D. Bierlein and T. E. Gier: "$K_xRb_{1-x}TiOPO_4$: A new nonlinear opticalmaterial," J. Appl. Phys., **47** (1976) 4980.
9) D. W. Anthon and C. D. Crowder: "Wavelength dependent phase matching in KTP," Appl. Opt., **27** (1988) 2650.
10) T. Y. Fan, C. E. Huang, B. Q. Hu, R. C. Eckardt, Y. X. Fan, R. L. Byer and R. S. Feigelson: "Second harmonic generation and accurate index of refraction measurements in flux-grown $KTiOPO_4$," Appl. Opt., **26** (1987) 2390.
11) K. Kato: "Second harmonic and sum-frequency generation to 4950 and 4589 A in KTP," IEEE J. Quantum Electron., **QE-24** (1988) 3.
12) 梅垣真祐，ほか："レーザー光の波長変換—基礎と最近の展望"，第17回冬期講習会テキスト（応用物理学会日本光学会，1991）．
13) 黒田和男，ほか："非線形光学の基礎，材料，応用"，第14回冬期講習会テキスト（応用物理学会光学懇話会，1988）．