

## 波長変換の描き方 (1)

バイオリン奏者は、振動する弦の長さが半分となるように弦を押さえて弓を引くことで、1オクターブ高い音を奏でるそうです。光の場合、レーザー共振器の長さを半分にする…というわけにはいきませんが、いわゆる非線形光学結晶にコヒーレントな光を集光すると、二倍高調波が発生します。

この第二高調波発生 (second harmonic generation: SHG) の歴史は古く、1960年のレーザー発振の翌年、Frankenら<sup>1)</sup>が水晶を用いて初めてSHGを観測した実験に遡ります。その翌年にはArmstrongら<sup>2)</sup>によって波長変換の理論が体系化されていて、レーザー発振の直後から驚くべきスピードで非線形光学の研究が走り出していたことがうかがい知れます。それから40年あまり経った現在も、非線形光学結晶の育成や擬似位相整合素子化、波長変換を利用した新しい光情報処理応用などが精力的に研究されています。

さて、SHGはいまや固体レーザーの一部として使われており、私たち光の研究者にとって最も馴染みの深い非線形光学現象となっています。厳密な理論や解説については数多くの教科書に譲るとして<sup>3)</sup>、この工房では2回にわたり、あまり教科書では触れられていない角度からSHGを描く試みをします。今回は、非線形分極の異方性をビジュアルに表現する方法を紹介しましょう。

## 1. 結晶の線形な個性

効率的にSHGが起こるためには、結晶が大きな非線形光学定数をもつとともに、位相整合 (基本波と二倍波の位相速度が等しい) 条件が満たされる必要があります。フォトニック結晶や擬似位相整合素子などの人工的な周期構造を利用しない限り、位相整合の可能性は結晶の複屈折によって決まります。複屈折は一般に、屈折率楕円体や屈折率曲面によって表現されますが<sup>4)</sup>、ここでは光電場  $\mathbf{E}$  に対する電束密度の応答  $\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E}$  に注目し、誘電率テンソル  $\epsilon$  (または屈折率) で結晶の線形な個性を表現します。

後で示す非線形分極と対応させるため、ここでは線形分極応答に注目しましょう。光電場によって誘起される線形分極  $\mathbf{P}^\omega$  は MKSA 単位系で  $\mathbf{P}^\omega = \epsilon_0 \chi^{(1)} : \mathbf{E}$  ( $\epsilon_0$  は真空の誘電率、 $\chi^{(1)}$  は線形感受率で2階のテンソル、 $:$  はテンソルのかけ算を表す) と表され、結晶の主軸 ( $X_1, X_2, X_3$ ) の座標系では、次のように書けます。

$$\begin{pmatrix} P_1^\omega \\ P_2^\omega \\ P_3^\omega \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} \chi_{11}^{(1)} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{22}^{(1)} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33}^{(1)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} \quad (1)$$

ここで、代表的な非線形光学結晶である  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) を例にとり、誘起される分極を描いてみましょう。図1は、線形分極  $\mathbf{P}^\omega$  の光電場  $\mathbf{E}$  依存性を示したものです。各感受率  $\chi_{ii}^{(1)} = n_i^2 - 1$  ( $i=1, 2, 3$ ) は屈折率 ( $n_{1,2}=1.6544, n_3=1.5422$ ; 波長 1064 nm での値) から求められます。球面上の各点は光電場ベクトルの向きを表し、各地点に描かれているコーンは、対応する光電場 (一定振幅とする) により誘起される線形分極の向きと大きさを表現しています。全体的に分極ベクトルが放射状に向っていますが、これは、分極  $\mathbf{P}^\omega$  が、ほぼ  $\mathbf{E}$  と平行であることに対応しています。BBOは一軸性の結晶であるため、厳密にいうと  $X_1$ - $X_2$  面外では  $\mathbf{E}$  と  $\mathbf{P}^\omega$  が非平行になっていますが、これは非常に小さな角度です。同じく代表的な非線形結晶である LiNbO<sub>3</sub> (LN) についても、同様のベクトルマップが描けます。一般に、複屈折そのものはさほど大きくないので、次に示す非線形な個性と比べると、線形な個性はあまり強くないといえるでしょう。

## 2. 結晶の非線形な個性

次に、同様の手法で非線形分極を表現してみましょう。二倍周波数で振動する非線形分極は、 $\mathbf{P}^{2\omega} = \epsilon_0 \mathbf{d} : \mathbf{E}\mathbf{E}$  ( $\mathbf{d}$  は二次非線形光学定数で3階のテンソル) と表されます。ここで、どのテンソル成分がゼロでない値をもつかは結晶の対称性に依存します。SHGの場合には縮退表示  $d_{il}$  ( $i=1\sim 3, l=1\sim 6$ ) が可能となり、また、Kleinmanの対称性を仮定すると、BBOとLNが属する点群  $3m$  の結晶では、次のように簡略化されます<sup>3)</sup>。

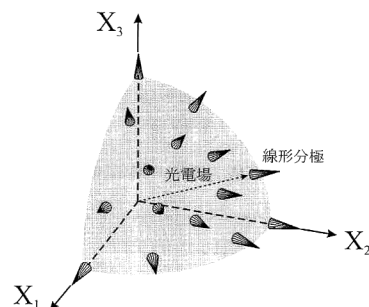


図1 線形分極の三次元ベクトルマップ (BBO).

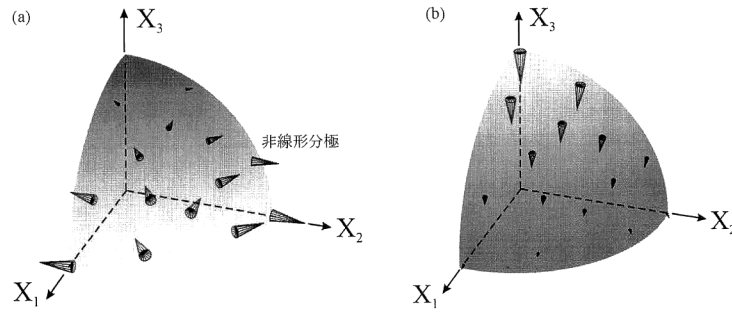


図2 非線形分極の3次元ベクトルマップ. (a) BBO, (b) LN.

$$\begin{pmatrix} P_1^{2\omega} \\ P_2^{2\omega} \\ P_3^{2\omega} \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1^2 \\ E_2^2 \\ E_3^2 \\ 2E_2E_3 \\ 2E_3E_1 \\ 2E_1E_2 \end{pmatrix} \quad (2)$$

この式に非線形光学定数 ( $d_{22}=2.3$ ,  $d_{31}=-0.16$ ,  $|d_{33}|<0.1$  for BBO;  $d_{22}=2.1$ ,  $d_{31}=-4.35$ ,  $d_{33}=-27.2$  for LN, 単位は pm/V, 基本波波長 1064 nm の値<sup>5)</sup>) を代入すると, 非線形分極を計算することができます. 図2は, 光電場  $E$  の振動方向に対する, 二倍周波数の非線形分極応答  $P^{2\omega}$  を図示したものです. 図1と同様, 球面上の各点は光電場  $E$  の向きを表し, コーンは対応する光電場により誘起される非線形分極  $P^{2\omega}$  の向きと大きさ (明るい部分が大きい) を表現しています. また, 球面上の濃淡は  $P^{2\omega}$  の大きさを表しています. これをみると, 非線形分極は明らかに光電場とは異なる方向にも誘起されることがわかります. また, BBO と LN は同じ点群  $3m$  に属するにもかかわらず, 全く異なる三次元ベクトルマップとなっています. これはまさに, 非線形光学定数のどのテンソル成分が大きいのか, という結晶の個性が明白に映し出されているのです.

さて, 前述した通り, 位相整合の可能性は結晶の線形な個性から決まります. BBO と LN (ともに負の一軸性結晶) におけるタイプ I の位相整合条件は, 基本波が常光線, 第二高調波が異常光線のときに可能となり, 波の伝搬方向に関して「 $X_3$  軸と一定の角度  $\theta$  だけ傾いた方向」という制約になります. これだけでは  $X_3$  軸周りの回転の自由度が残されていますが, 実際には, 非線形分極が有効に SHG に寄

与するよう,  $X_3$  軸周りの回転角, すなわち方位角  $\phi$  を選びます. そこではむしろ, 図2に示した非線形な個性が反映されるのです. これは一般に, 有効非線形光学定数の概念で教科書等に記述されています<sup>3)</sup>.

以上に示したように, 光電場の振動方向を表す球面上に, 誘起される非線形分極ベクトルをプロットすることで, 特に結晶の非線形な個性をあらわに表現できたのではないのでしょうか. ところで, 非線形分極に関するこのような表現はあくまで SHG についてのみ可能, というのを付け加えておきます. 例えば和周波発生では, 光電場の周波数が縮退していないため,  $3+3=6$  次元の球面上に三次元の非線形分極ベクトルをプロットする必要があります. これをビジュアルに表現することは至難の業かもしれません.

さて, 次回は話を一歩進め, 位相整合条件に応じて, 光波の振幅・位相が伝搬とともにどのように変化するかを Phasor 表示により描いてみましょう.

この記事に関するご意見, お問い合わせは, ashihara@iis.u-tokyo.ac.jp, もしくは kadono@mech.saitama-u.ac.jp, または ura@dj.kit.ac.jp までお寄せください.

(東京大学生産技術研究所 芦原 聡)

## 文 献

- 1) P. A. Franken, *et al.*: Phys. Rev. Lett., **7** (1961) 118.
- 2) J. A. Armstrong, *et al.*: Phys. Rev., **127** (1962) 1918.
- 3) 例えば, R. Boyd: *Nonlinear Optics (2nd Edition)* (Academic Press, 2003).
- 4) 小川智哉: 結晶工学の基礎 (裳華房, 1998).
- 5) V. G. Dmitriev, *et al.* (Ed.), *Handbook of Nonlinear Optical Crystals (3rd Revised Edition)* (Springer, 1999).