

非線形光学デバイスの物理

黒田 和男

Physics of Nonlinear Optical Devices

Kazuo KURODA

A tutorial overview of fundamental features of nonlinear optics covering frequency conversion and nonlinear index of refraction is given. Symmetric properties of nonlinear susceptibilities are discussed from the phenomenological point of view. Then, Manley-Rowe relation is derived from the conservation of photon numbers during the interaction. Details of phase matching condition are discussed. Finally we discuss briefly self-focusing and self-phase modulation caused by the nonlinear index of refraction.

Key words: nonlinear susceptibility, frequency conversion, second harmonic generation, phase matching condition, nonlinear refractive index

レーザーの発明により光学の新たな研究分野が興った。その代表が非線形光学である。1961年にFrankenらにより第二高調波発生が報告されて以来¹⁾、次々と新しい現象が発見された。今では、非線形光学効果を用いた波長変換や光パルス技術、さらに、非線形分光法や量子光学光源など、光を扱う分野に広く普及している。特に波長変換技術は、レーザーの直接発振が得られない波長域で、レーザーと同等のコヒーレント光源を実現する重要な方法である。例えば可視域を見ても、赤色と青色は半導体レーザーでカバーできるが、緑から黄色の波長域で発振する半導体レーザーは現状では存在せず、それに代わる固体レーザーでも実用に耐えるものはない。近赤外固体レーザー光の第二高調波発生というのが最も実用的なデバイスとなっている。本稿では、これら非線形光学効果を用いたデバイスの基礎となる物理を解説する。詳しくは専門書を参照していただきたい^{2,3)}。

1. 非線形分極

物質を光で照射すると、光の電場によって物質内部に分極が誘起される。光の電場を \mathbf{E} 、物質の分極を \mathbf{P} と表す。

光がそれほど強くなければ、分極は電場に比例する。比例係数を(電気)感受率といい、SI単位系では、 $\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}$ と書く。 ϵ_0 は真空の誘電率である。等方性媒質中では、 $\chi^{(1)}$ はスカラーである。比誘電率を ϵ 、屈折率を n とすると、 $\epsilon = n^2 = 1 + \chi^{(1)}$ の関係がある。ただし、物質の透磁率は真空における値 μ_0 に等しいと近似した。物質には必ず分散があり、感受率あるいは誘電率は光の周波数に依存する。これを考慮し、入射光が角周波数 ω の単色光であるときの感受率を $\chi^{(1)}(\omega)$ と書く。

線形な応答の範囲で、光電場と分極は同じ振動数で振動するが、位相差が生じる場合がある。このとき、 $\chi^{(1)}$ は複素数になり、したがって、誘電率や屈折率も複素数になる。複素誘電率の虚部は物質による光の吸収を表す。感受率や誘電率の実部と虚部は独立ではなく、クラマース・クロネックの関係式で結ばれる。

結晶のような異方性媒質では、同じ大きさの光電場がかかっても、方向によって分極の大きさが異なる。このため、ベクトル \mathbf{E} とベクトル \mathbf{P} は一般には平行にはならない。このとき、感受率や誘電率は2階のテンソル、すなわち、 3×3 の行列で表される。誘電率を対角化した固有値

から主屈折率が求められる。これが結晶光学の出発点である。

光が強くなると、誘起される分極のうち、電場の2乗や3乗に比例する成分が無視できなくなる。異方性を考慮して、分極を電場の冪級数に展開すると

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E + \epsilon_0 \chi^{(2)} : EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} : EEE \quad (1)$$

と書ける。 $\chi^{(2)}$ は二次の非線形感受率で、3階のテンソル、すなわち、3つの添え字をもつ $3 \times 3 \times 3$ 行列である。縦にドットが並んだ記号は、テンソルとベクトルの内積を意味する。総和記号と添え字を省略するための記号である。同様に $\chi^{(3)}$ は三次の非線形感受率で、4つの添え字をもつ4階のテンソルである。

二次の非線形分極を考えよう。いくつかの周波数成分を含む光が非線形光学媒質に入射したとする。二次の項には、2倍の周波数(第二高調波発生)、和の周波数(和周波発生)、差の周波数(差周波発生)成分が現れる。実はこれにもうひとつDC成分、すなわち、周波数0の成分が加わる。二次の効果でDC分極が発生する現象を光整流という。以上が二次の非線形光学効果のすべてである。

和周波数発生 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ を例にとると、このときの非線形分極は

$$P_j(\omega_3) = g \epsilon_0 \sum \chi_{jkl}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_k(\omega_1) E_l(\omega_2) \quad (2)$$

と書ける。非線形感受率は光周波数 ω_1 と ω_2 の関数であるから $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ とすればこと足りる。それをあえて最初に $-\omega_3$ を付け加え、 $\chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2)$ と表記した理由は、後述する置換対称性を表す式がわかりやすくなるからである。なお、この表記法では、3つの周波数を加えるとゼロになる。もうひとつここで付け加わった因子 g は重複度を表す因子である。すなわち、2乗を展開したときの二項係数を2で割った値をとり、第二高調波発生($\omega_1 = \omega_2$)に対し $1/2$ 、それ以外で1である[†]。

和周波発生では2つの周波数の足し算になるが、差周波発生では引き算になる。この場合を統一的に表すため、周波数に正負の符号をつける。負の周波数成分は正の周波数成分の複素共役を意味する。すなわち、 $E(-\omega) = E^*(\omega)$ である。このように約束すると、式(2)で二次の非線形光学効果のすべてを表すことができる。例えば、 ω_2 の代わりに $-\omega_2$ を入れれば、差周波発生に分極が得られる。

なお、電場だけでなく感受率についても、すべての周波数の符号を変えると、もとの値の複素共役に等しくなる。

三次の非線形感受率も同様に議論できる。周波数が $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ の分極は

$$P_j(\omega_4) = h \epsilon_0 \sum \chi_{jklm}^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) \times E_k(\omega_1) E_l(\omega_2) E_m(\omega_3) \quad (3)$$

となる。感受率の引数に対して $-\omega_4 + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = 0$ が成り立つ。周波数は正負の符号をもつ。ここで重複度を表す因子 h は3乗を展開したときの二項係数(1, 4, 6)を $4 = 2^2$ で割った値である。

2. 非線形感受率の対称性

ここで、非線形感受率が満たす一般的な性質を対称性の観点からまとめておこう。

2.1 真性置換対称性

二次の非線形感受率は

$$\chi_{jkl}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \chi_{jlk}^{(2)}(-\omega_3; \omega_2, \omega_1) \quad (4)$$

を満たす。すなわち、周波数と添え字をペアにして、 (ω_1, k) と (ω_2, l) を同時に入れ替えても値は変わらない。これは式(2)で、 $E_k(\omega_1)$ と $E_l(\omega_2)$ を入れ替える操作であるから、こうしても実質何も変化しないことは自明であろう。これを真性置換対称性という。特に第二高調波発生では $\omega_1 = \omega_2$ であるから、 $\chi_{jkl}^{(2)}$ は添え字 k, l に対し対称である。2つの添え字に対し対称であれば、独立な成分の数は $3 \times 3 = 9$ から6に減る。この6つの成分を並べて1つの添え字で表すことを添え字の縮約という。通常、第二高調波発生の非線形感受率は

$$d_{jp} = \frac{1}{2} \chi_{jkl}^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) \quad (5)$$

と表す。ここで、 $p=1 \sim 6$ は (k, l) を縮約した添え字である。この記法に従えば、もともと三次元の行列を、 3×6 の二次元行列で表現できるので都合がよい。なお、係数 $1/2$ は慣習によるものである。和・差周波発生では、周波数分散のため、第2、第3添え字だけを入れ替える対称性は厳密には成り立たないが、近似的に成り立つものとして縮約表現が使われることが多い。

2.2 全置換対称性

吸収がない、すなわち、光と物質の相互作用が非共鳴であるという前提のもとで、3つの周波数と添え字の循環に対する対称性が成り立つ。

[†] 二項係数を2で割るのは、実信号と複素信号の関係式 $E \cos(kz - \omega t + \phi) = \frac{1}{2} E e^{i\phi} e^{i(kz - \omega t)} + \frac{1}{2} E e^{-i\phi} e^{-i(kz - \omega t)}$ から、正の周波数成分を $E(\omega) = E \exp(i\phi)$ と定義したことによる。 $E(\omega)$ に $1/2$ を含める定義では、 g は2倍の値をとる。どちらの定義でも、非線形感受率 $\chi^{(2)}$ の値は変わらない。また、 g を導入することによって、 $\omega_2 \rightarrow \omega_1$ の極限で $\chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) \rightarrow \chi^{(2)}(-2\omega_1; \omega_1, \omega_1)$ が成り立つ。

$$\begin{aligned}\chi_{jkl}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) &= \chi_{klj}^{(2)}(\omega_1; \omega_2, -\omega_3) \\ &= \chi_{ljk}^{(2)}(\omega_2; -\omega_3, \omega_1)\end{aligned}\quad (6)$$

これに真性置換対称性(4)を組み合わせれば、周波数と添え字の組のすべての置換に対し対称になることが結論できる。これを全置換対称性とよぶ。さらに、分散が無視できれば、非線形感受率は、添え字のすべての置換に対して対称になる。これをクラインマンの対称性という。

全置換対称性を線形の誘電率に適用すると

$$\begin{aligned}\epsilon_{jk}(\omega) &\equiv \epsilon_{jk}(-\omega; \omega) = \epsilon_{kj}(\omega; -\omega) \\ &= \epsilon_{*jk}(-\omega; \omega) \equiv \epsilon_{*kj}(\omega)\end{aligned}\quad (7)$$

となる。すなわち、誘電率はエルミート共役(転置して複素共役をとる操作)に対し不変である。

全置換対称性(6)や(7)は、エネルギー損失がないという条件が必要である。この逆も正しく、全置換対称性が成り立てば、エネルギー損失はない。これを示すには、単位時間あたりのエネルギーの損失が

$$Q = \left\langle \mathbf{E} \cdot \frac{d\mathbf{D}}{dt} \right\rangle + \left\langle \mathbf{E} \cdot \frac{d\mathbf{P}_{NL}}{dt} \right\rangle \quad (8)$$

で与えられることを用いる。ここで、括弧は時間平均を意味する。第1項が線形分極、第2項が非線形分極に依存する損失率である。条件式(7)および(6)が満たされると、それぞれ、損失率の線形部分と二次の非線形部分がゼロになることを容易に確かめることができる。なお、損失がないという条件は、系が可逆であるといいかえてもよい。よって、全置換対称性は、時間反転に対する対称性から導かれる結果である。

2.3 空間対称性

結晶は、空間の回転や鏡映に対し固有の対称性をもつ。それを反映し、各次数のテンソル要素の間に特定の関係が生じる。例えば、空間反転に対して対称な系では、二次の非線形感受率はゼロになる。いいかえると、二次の非線形光学効果は反転対称性を欠く系でしか起こらない。これに対し、三次の非線形感受率はガラスや液体のような非晶質を含め、すべての物質中でゼロではない成分をもつ。空間対称性を分類する点群(あるいは空間群)すべてに対し、ゼロとならないテンソル成分や、それらの間の関係が求められている⁴⁾。

3. マンリー・ロウの関係式

線形媒質中では、光波間の相互作用は存在せず、複数の光波が入射しても互いに独立に伝搬する。ところが、非線形光学効果があると光波間に相互作用が発生し、互いに影響を及ぼしあう。その結果、新しい周波数成分の発生や、

相互作用する光波間におけるエネルギーの授受や位相変化が生じる。この過程は、マクスウェル方程式、あるいは、波動方程式に非線形分極の項を加えることによって解析できる。通常は、各光波の複素振幅の変化を記述する結合波方程式の形に変形し、振幅の増減や位相変化を求める。ここでは、結合波方程式を導くことはしないが、相互作用の過程を光子数の変化という観点から調べよう。例として和周波発生 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ を考える。それぞれの成分の光子数密度を N_j とする。吸収がないとすると、 ω_3 光子が減少した数だけ ω_1 および ω_2 光子の数が増えるから

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_3}{dt} \quad (9)$$

の関係が成り立つはずである。ところで、光の強度 I_j と光子数密度の間には $I_j = \hbar \omega_j N_j v_j$ の関係がある。ただし、 $\hbar \omega_j$ は光子1個のエネルギー、 v_j は速度である。時間 dt に進む距離は $dz = v_j dt$ であることを考慮すると、式(9)は

$$\frac{1}{\omega_1} \frac{dI_1}{dz} = \frac{1}{\omega_2} \frac{dI_2}{dz} = -\frac{1}{\omega_3} \frac{dI_3}{dz} \quad (10)$$

と書き換えられる。これらの式をマンリー・ロウの関係式とよぶ。ここでは光子数の増減の釣り合いからマンリー・ロウの関係式を導いたが、もともとは非線形な電気回路のパワーに関する一般的な考察から導かれた関係式で⁵⁾、これを非線形光学効果による波長変換に適用したものである。事実、三光波の結合波方程式から導くことができる⁶⁾。そのときに必要な条件は、非線形感受率が置換対称性(6)を満足することである。

4. 位相整合条件

二次の非線形光学結晶に二光波 ω_1 と ω_2 を入射したときに生じる非線形分極の大きさは、第二高調波項も和・差周波項もだいたい同じであって、格別の差があるわけではない。にもかかわらず、ある条件では第二高調波が発生し、別の条件では和周波が発生する。この違いは、位相整合条件を満たすか否かに原因がある。位相整合条件を満たす過程は、伝搬とともに順調に成長していくが、それ以外は成長できず、ほとんど測定にすらかからない。

光子は $\hbar \omega$ のエネルギーをもつと同時に、 $\hbar \mathbf{k}$ の運動量をもつ。位相整合条件は、光子の運動量保存則と解釈できる。和周波発生 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ を考えよう。運動量保存則からのずれを、 \hbar を除いた波動ベクトルで表し、 $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ とする。これを波数不整合という。結晶の厚さを L とし、伝搬方向を z 軸にとると、非線形分極 $\mathbf{P}_z(\omega_1 + \omega_2)$ は $\exp[i(k_1 + k_2)z]$ で位相が変化するが、発生した和周波

振幅 $E(\omega_3)$ の位相は $\exp(ik_3z)$ であるから、両者の間に $\Delta k_z L$ の位相差が生じる。この位相差が π を超えると、エネルギーの流れる向きが逆転し、 ω_3 光子が ω_1 と ω_2 に分裂する過程が起こる。こうして、せっかくなされた和周波成分が減少に転じてしまうのである。位相が反転する距離

$$L_c = \frac{\pi}{|\Delta k_z|} \quad (11)$$

をコヒーレンス長という。波長変換効率を上げるためには、コヒーレンス長を結晶長より長くしなくてはならない。波数不整合がなくなる条件 $\Delta k=0$ を位相整合条件という。

結合するすべての光波が同じ方向に進む場合を考えよう。このとき、位相整合条件 $\Delta k=0$ は

$$\omega_1 n_1 + \omega_2 n_2 = \omega_3 n_3 \quad (12)$$

となる。ここで、 n_j は ω_j 光に対する屈折率である。この式は、周波数を重みとして n_1 と n_2 の重み付き平均が n_3 に等しくなることを意味する。特に第二高調波発生で、結合する基本波光子の偏光が同じときは、基本波と二倍波の屈折率が等しいときに位相整合条件が満足される。ところが、物質には必ず分散があるから、基本波と二倍波で屈折率が等しくなるはずがない。何か特別の工夫をしない限り、位相整合条件は満足されない。その特別の工夫としては、複屈折を利用する方法が一般的である。さらに、光導波路やフォトニック結晶などの構造分散を利用する方法がある。特にフォトニック結晶構造を導入すると、波長の広い範囲で分散を制御することができる。二次の非線形光学材料でフォトニック結晶を実現するのは非常に難しく実用的な例はないが、フォトニック結晶ファイバーで三次の非線形光学効果を制御した例は多数ある⁷⁾。また、相互作用する光波の伝搬方向に角度をつけベクトル的に位相整合条件を満たす非平行配置の方法も有効である。以上は $\Delta k=0$ を実現する方法であるが、その代わりに波数の不整合を許容し、非線形感受率を変調して位相ずれの効果を打ち消す疑似位相整合法もよく用いられる。

5. 複屈折を用いた角度位相整合

結晶のような異方性媒質中では、光は2つの固有偏光状態に分けられ、それぞれ異なった屈折率で伝搬する。この屈折率差を利用すると位相整合条件を満たすことができる。第二高調波発生における位相整合条件のエッセンスを、1962年のMakerらの有名な論文から3枚の図を借りて説明しよう⁸⁾。図1はルビーレーザー光(波長694.3nm)

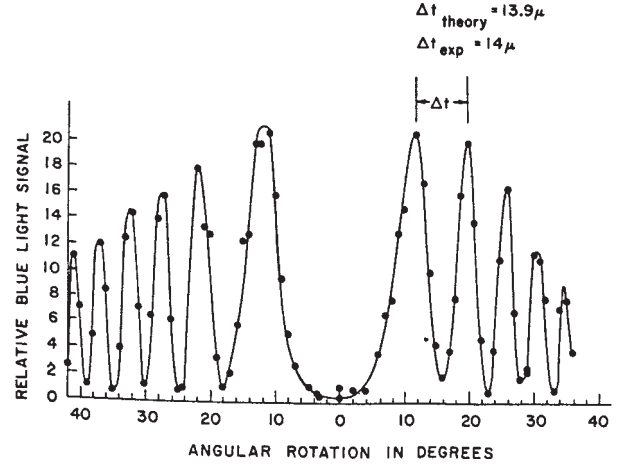


図1 メーカーフリンジ⁸⁾。

を水晶の結晶に当て、結晶を回転したときに発生した二倍波の強度をプロットしたグラフである。横軸は結晶の回転角であるが、角度が変わると実効的に結晶の厚さに変化するから、相互作用長 L と考えてよい。この結果は、二倍波強度が相互作用長 L に対して周期に変化することを実験的に示したものである。振動の周期は式(11)のコヒーレンス長の2倍に等しい。この強度の振動をメーカーフリンジとよんでいる。次の図2は、水晶の代わりに potassium dihydrogen phosphate (KH_2PO_4 , KDP) 結晶を用いて行った第二高調波発生の実験結果である。KDPは光学的には負の一軸結晶であるから、異常光線の屈折率が常光線屈折率より小さい。幸いルビーレーザー光に対しては、二倍波の異常光線主屈折率が、基本波の常光線屈折率より小さいため、 z 軸(光学軸)に対する角度 θ のある値で、 $n_o(\omega) = n_e(2\omega, \theta)$ を満足させることができる。ただし、 n_o は常光線屈折率、 n_e は異常光線屈折率で角度 θ の関数である。図2の尖った曲線は θ を変えたときの二倍波強度をプロットしたものであるが、特定の角度 θ_0 (位相整合角) でのみ強く出ることがわかる。この角度で位相整合条件が満たされる。この方法を角度位相整合法という。図のもうひとつのなだらかに変化する曲線は、 θ を位相整合角に保ち、 z 軸の回りの回転角 ϕ を変えたときの二倍波強度である。このなだらかな変化は、非線形感受率の実効的な値が、 θ, ϕ に依存して変わることが原因である。なお、図2中の挿入図は、基本波の常光線と、二倍波の異常光線の屈折率面を描いたものである。2つの屈折率面の交線(z 軸を対称軸とする円) が位相整合条件に相当する。図3もKDP結晶を用いた実験結果である。右の写真は、基本波に発散光を用いたときの、二倍波の角度広がりを示したものである。この観測から二倍波は $\theta > \theta_0$ の領域にのみ広

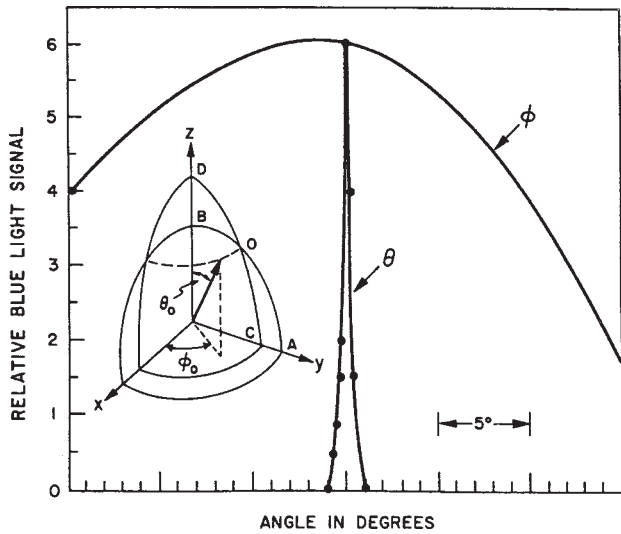


図2 位相整合条件⁹⁾.

がることわかる。この現象は次のように説明できる。図3のAは二倍波の異常光線の屈折率面をz軸を含む面で切断した断面上の曲線(楕円)である。同じくBは基本波の常光線の屈折率面の断面曲線(円)である。図中には明示されていないが、2つの曲線の交点が位相整合角 θ_0 を与える。この図の \vec{k}_r' と \vec{k}_r'' は基本波の波動ベクトル、 \vec{k}_b は二倍波の波動ベクトルである。図の状態 \vec{k}_r' と \vec{k}_r'' の和が \vec{k}_b に等しくなり、非平行配置における位相整合条件が満たされている。この図から明らかであるが、屈折率面A上で $\theta > \theta_0$ のBの内部に入り込んでいる点に対しては、位相整合条件を満足するペアが存在する。実際、その点から動径と直交する線を引いてBとの交点を求めればよい。ところが、 $\theta < \theta_0$ の点はBの外側にくるから、動径に直交する線はBとは交わらない。すなわち、位相整合条件を満足する基本波のペアは存在しない。こうして、二倍波が $\theta > \theta_0$ の側にのみ広がることが理解できる。

上の例では、基本波の光子は同じ偏光状態にあるとしたが、必ずしもそうである必要はない。負の一軸結晶の場合、基本波の常光線と異常光線が結合して二倍波の異常光線を生成する過程で位相整合条件を満たすことも可能である。2つの場合を区別するため、結合する基本波光子の偏光が等しい場合をType I、偏光が異なる場合をType IIの位相整合とよぶ。

複屈折材料中では、光の波面の進む方向とエネルギーの進む方向(光線方向)が一般には異なる。そのため、基本波と二倍波で波面は並行して進むが、光線は有限の角度をもって離れていく。これをウォークオフという。入射光ビームを絞るほど、ウォークオフの効果は深刻になる。ビー

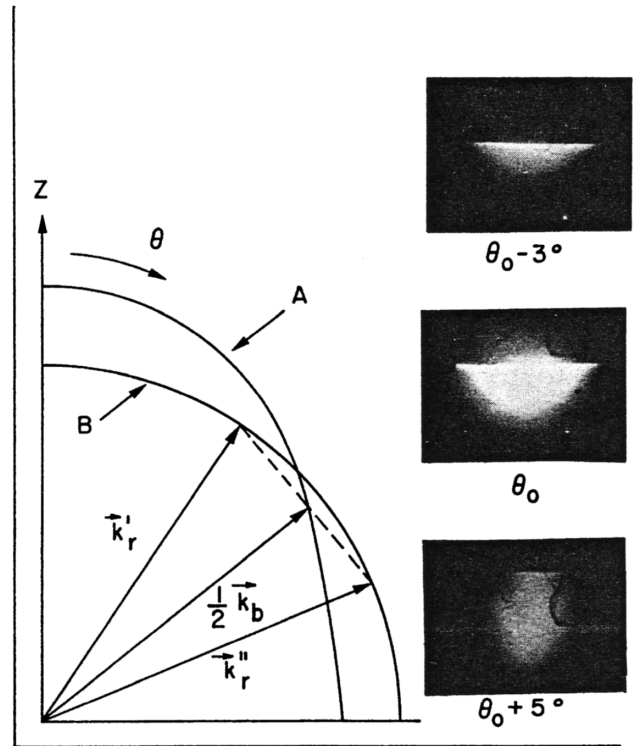


図3 発散光を入射したときの第二高調波発生⁹⁾.

ム径が与えられたときに、ウォークオフで基本波と二倍波が分離してしまう距離を口径長という。ビーム径を絞ったときは回折によってビームが広がる効果も考慮しなくてはならない。回折の効果が顕著に現れる伝搬距離を焦点深度という。口径長や焦点深度は結晶長より大きいことが望ましい。横方向に光を閉じこめる光導波路構造が利用できる場合は、これらの問題は回避できる。

図2の実験結果が示すように、角度 θ に対する条件は非常に厳しい。実用化のためには、 θ の許容幅をある程度以上大きくしなくてはならない。許容幅は $\Delta kL < \pi$ で決まるから、許容幅を広げるには薄い結晶を使えばよいが、結晶が薄くなれば、変換効率が下がる。したがって、入射角を変えたときに、 Δk の変化が小さく、許容幅の広い材料が望ましい。図3の屈折率面を使った作図から明らかのように、基本波と二倍波の屈折率面の交差角が小さくなれば、位相整合角の許容幅は広がる。許容幅が一番大きくなるのは、両者が接するときで、 $\theta = \pi/2$ のときに実現する。これをノンクリティカル位相整合という。都合がよいことに、このときはウォークオフもなくなる。しかし、角度で微調整をすることはできないので、結晶の温度を調整するか、もとのレーザーが波長可変のときは、入射光の波長を変えるなどして、位相整合条件が満たされるように制御する。

6. 擬似位相整合

第二高調波発生を例に、位相整合条件が満たされないときの相互作用の様子を改めて考察しよう。二倍波の複素振幅を複素平面上のベクトルとして表す（フェーザー表示）。非線形分極の作用により、二倍波の複素振幅に、微小伝搬距離 Δz に比例する増分が加わっていく。位相整合条件が満たされると、この増分はすでに存在する二倍波の複素振幅と同位相で加わる。よって、図4のAのように、複素平面上で二倍波複素振幅は伝搬距離に比例して直線的に伸びていく。ところが、波数不整合があると、増分は、既存の二倍波複素振幅に対しある位相差をもつ。図4のBはこの場合のフェーザーの発展を図示したものであるが、複素平面上では増分が一定の角度をもって付け加わるから、その軌跡は曲線を描く。結合波方程式を解くと、基本波の減衰が無視できる範囲で、この曲線は円になることがわかる。コヒーレンス長 L_c だけ進むと原点から一番遠く離れた点 P_1 に到達する。この後は、振幅は減少に転じ、やがて振り出しに戻る（ただし、全く痕跡が残らないかというところではなく、基本波の位相が変化している）。

位相不整合があっても、コヒーレンス長に相当する P_1 点までは振幅は成長する。擬似位相整合は、これを最大限生かそうという方法である⁹⁾。具体的には、 P_1 点に到達したときに、非線形感受率の符号を変えてしまう。こうすると、二倍波振幅に加わる増分の向きが逆転する。こうしても、円の成長の向きは変わらないので、図4のBのように、振幅は半円を描いて増大していく。位相整合がとれたときと比べると、振幅が増大するペースは、円の半円周と直径との比 $2/\pi$ だけ遅くなる。したがって、第二高調波の変換効率は $(2/\pi)^2$ だけ低下する。その反面、位相整合条件の束縛から逃れられるのは大きな利点である。束縛のひとつに、角度位相整合法では、基本波と二倍波の偏光は異なっていないとしないので、非線形感受率の対角成分を使うことはできないことが挙げられる。擬似位相整合を用いれば、このような束縛はない。例えばニオブ酸リチウムの非線形感受率の最大成分は $\chi_{33}^{(2)}$ であるが、複屈折を用いる方法ではこの成分を使うことはできない。ところが、擬似位相整合ではこれを有効に使うことができる。擬似位相整合法で基本波と二倍波が同一の偏光状態にあるとき、Type 0の位相整合とよぶこともある。

擬似位相整合を実現するためには、コヒーレンス長ごとに非線形感受率の符号を変えた素子が必要になる。これの実現には分極反転が用いられる。二次の非線形光学材料の多くは強誘電体材料で、自発分極をもっている。自発分極の方向が反転すると、非線形感受率の符号が変化する（す

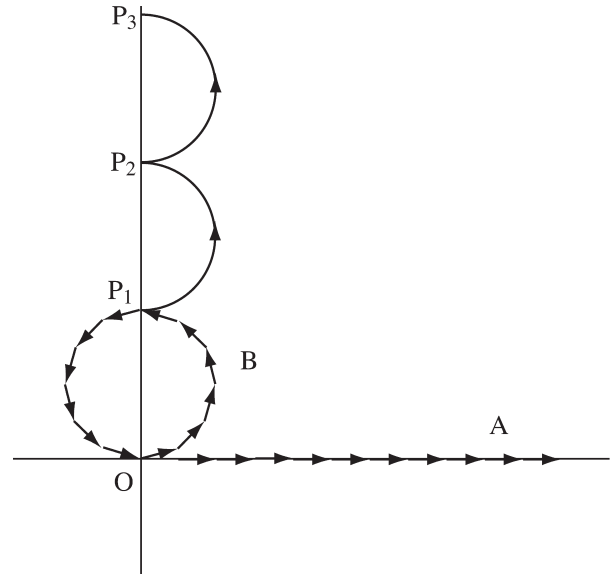


図4 位相整合状態 (A), および、位相不整合があるとき (B) の二倍波の複素振幅の成長と擬似位相整合。

べてではなく、符号が変わらない成分もある)。分極と逆向きに電場を掛け、分極のヒステリシスカーブをたどることにより、分極を反転させることができる⁹⁾。分極を反転するのに必要な電場（抗電場）は典型的には、数 kV/mm から数十 kV/mm である。コヒーレンス長は数 μm から数十 μm であるが、結晶の厚さは数百 μm が普通であるから、分極反転部分のアスペクト比は大変大きい。現実にアスペクト比の大きな構造がきれいにでき上がっているが、そのメカニズムにはまだ不明の点が残されている¹⁰⁾。外部電場以外に、電子ビーム照射によって分極反転を起こすなどの方法も報告されている。また、化合物半導体も大きな非線形感受率をもつが、これには電場引加法は使えない。結晶成長プロセスで結晶の向きを変え、分極反転素子を形成する試みが行われている。

周期分極反転素子ではバルクだけでなく、光導波路構造を同時に付与することも多い。光導波路を使えば回折の効果はなくなるから、相互作用長を長くとることができ、高効率な波長変換が実現する。光導波路構造としては、イオン交換法で導波部分の屈折率を上げる拡散型導波路が一般的である。このほか、板状のものを作製し、微細加工で不要部分を落とし、リッジ型の導波路に仕上げる方法もある。

分極反転構造は、必ずしも周期的でも、あるいは、デュエティ比が 1:1 である必要もない。例えば、複数の波長で波長変換を行いたいという要求は普通にある。周期構造に限ると、波長ごとに、それに適合する周期の分極反転素子を用意しなくてはならない。ところが、任意のパターン

の分極反転構造を作ることが可能であれば、1つの素子で同時に多波長の変換ができる可能性がある。非線形感受率の大きさを連続的に変えることができるのであれば、最適解を得るのは難しくはない。ところが、実際には非線形感受率の符号を変えられるだけで、大きさを変えることはできない。すなわち、+1と-1からなるバイナリーパターンしか許されない。このため、最適化は簡単ではない。すなわち、分極反転構造が与えられたとき、波長変換特性は容易に計算できるが、その逆は簡単には解けないという、工学設計においてよく現れる逆問題のひとつである。各種の繰り返し計算法や、シミュレーテッド・アニーリングなど汎用の最適化法を用いた設計法が試されている。

周期分極反転素子を $\chi^{(2)}$ フォトニック結晶とする見方がある。この立場に立つと、二次元パターンの導入が考えられる¹¹⁾。分極反転のドメイン壁は結晶構造によって決まる特定の方向を向く。例えばニオブ酸リチウムでは、分極の軸は3回対称性をもち、軸に垂直な面内でドメイン壁は六角形の辺の方向のみが許される。したがって、任意の二次元パターンがつくれるわけではない。このように制約が強く、現状では、それほど広い応用は考えられていないが、第二、第三高調波を同時に発生するなどの試みがある。

7. 光パラメトリック過程

第二高調波発生や和周波発生は、特定の波長の光を生成する目的で利用される。ところが、光パラメトリック過程では、周波数 ω_3 の光(ポンプ光)を入射し、周波数 ω_1 と ω_2 の2つの光を発生させる。この一方を信号光、他方をアイドラー光という。この波長変換の最大の特徴は、エネルギー保存則 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ さえ満たせば、個々の周波数 ω_1 と ω_2 は自由に選べることにある。実際の信号光とアイドラー光の周波数は、これらの組み合わせが位相整合条件を満足するように決まる。結晶を回転したり、温度を変えたりすると、位相整合条件を満足する周波数のペアが変化する。この現象を利用すると、波長可変のコヒーレント光源をつくることができる。

光パラメトリック過程では、ポンプ光が十分強ければ、信号光やアイドラー光は指数関数的に(結合波方程式を解くと \cosh および \sinh 関数で)増大する。すなわち、増幅利得係数を定義することができ、非線形光学効果による光増幅とみなすことができる。この効果を用いて増幅器や、光共振器内に入れて発振器を組むことができる。前者を光パラメトリック増幅器(optical parametric amplifier, 略してOPA)、後者を光パラメトリック発振器(optical par-

ametric oscillator, 略してOPO)とよぶ。OPAでは、ポンプ光と同時に種となる弱い信号光を入れ、これを増幅する。増幅率はポンプ光の強度に比例するから、単一パスで増幅するOPAでは非常に強いポンプ光が必要になる。このため、Qスイッチレーザーや高ピークパワーの超短パルスレーザーが用いられる。OPOでは、共振器のQ値を適当な値に設計することにより、連続光から超短パルスまでさまざまな形態の発振器を構成できる。可視から赤外まで広い波長帯域で実用化されている。

8. 非線形光学材料

これまで、非常に多くの材料で、二次の非線形光学効果が観測されている。実際の応用にあたってどのように材料を選べばよいのだろうか。データ集として定評の高いDmitrievらの本では、非線形光学材料を4つのカテゴリーに分類している¹²⁾。それは、1) ベーシックな結晶(11)、2) よく使われる結晶(11)、3) その他の無機結晶(32)、4) 有機結晶(22)である。括弧内の数字は取り上げられた結晶の数である。これから新たに発見される結晶もあるだろうが、特に無機結晶についてはほぼ網羅されていて、この中から目的に合うものを選ぶということになる。有機結晶は、まだまだ新たな材料が開発される可能性がある。

材料選びの基準は、使いたい波長で、位相整合がとれ、吸収がない(十分小さい)こと、性能指数 $(\chi^{(2)})^2/n^3$ が大きいこと(n は関与する光波の平均的な屈折率)が挙げられる。光学的な性質がすぐれていること、すなわち、屈折率が均一であること、分散が大きすぎないこと、損傷閾値が高いこと、フォトリフレクティブ効果(光損傷)が起こらない(小さい)ことなども大事である。さらに、安価で入手しやすいことや、自作するのであれば、結晶成長が容易で加工しやすいことが望ましい。使用波長域が決まれば、候補は数種に絞られる。それらを試してみて、最善のものを選ぶというのが実際的な方法であろう。

インターネットを探すと何でも見つかる時代であるが、どの結晶を使えばよいかを助けてくれるソフトを無料でダウンロードできるサイトがある^{††}。便利な世の中になったものである。

9. 非線形屈折率

二次の非線形光学効果は波長変化に限られ、基本的に吸収を伴わない非共鳴の現象である。例えば、和周波発生では、光子のエネルギー保存則 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ が必ず成り立

^{††} <http://www.as-photonics.com/?q=SNLO>

表1 三次の非線形光学効果.

効 果	非線形感受率
三次高調波発生 和・差周波発生	$\chi^{(3)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega)$ $\chi^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, \pm\omega_2, \pm\omega_3)$
縮退四光波混合	$\chi^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)$
非線形屈折率	$\text{Re}[\chi^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)]$
二光子吸収	$\text{Im}[\chi^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)]$
誘導散乱	$\text{Im}[\chi^{(3)}(-\omega_2; \omega_2, \omega_1, -\omega_1)]$

ち、これを破るような波長変換は起こらない。一方、三次の非線形光学効果には、非共鳴現象だけでなく、物質とのエネルギーのやり取りを伴う共鳴現象も含まれる。このため、三次の非線形光学効果は多種多様である。表1にいくつかの三次非線形光学効果を挙げたが、これにとどまるものではない。

三次の非線形光学効果に、 $\chi^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega) |E(\omega)|^2 E(\omega)$ の形の項がある。この項は、入射波と同じ周波数 ω で振動するから、線形分極 $\chi^{(1)}(-\omega; \omega)E(\omega)$ と合わせて、分極は

$$P_j(\omega) = \epsilon_0 \sum \left(\chi_{jk}^{(1)} + \frac{3}{4} \chi_{jklm}^{(3)} E_l(\omega) E_m^*(\omega) \right) E_k(\omega) \quad (13)$$

となる。

特に等方的な媒質を考えると、誘電率に光強度に比例する項が加わることになる。屈折率は誘電率の平方根で与えられるから、屈折率が光強度に依存して変化する。これを

$$n = n_0 + n_2^E |E|^2 = n_0 + n_2 I \quad (14)$$

と書く。これを非線形屈折率効果、または、光カー効果という。なお、屈折率を変化させる光とそれを感じる光が別でもよい。非線形感受率では $(3/2)\chi^{(3)}(-\omega; \omega, \omega_1, -\omega_1) |E(\omega_1)|^2 E(\omega)$ の項がこれに相当する。

屈折率を複素数に拡張して考えると、実部は狭い意味の屈折率を意味し、一方、虚部は吸収係数を与える。非線形屈折率についても同様に、実部が本来の非線形屈折率効果を与え、虚部は光強度に比例する吸収、すなわち二光子吸収を与える。誘導ラマン散乱や誘導ブリュアン散乱も、形式的には、同じ形の三次非線形感受率の虚部で表される。この場合は、二光子吸収の場合と符号が異なり、増幅効果を表す。

異方性媒質では、非線形効果により複屈折や旋光性が誘起される。これらの現象は、誘電率テンソルに非線形な項 $h\chi_{jklm}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega_1, -\omega_1) E_l(\omega_1) E_m^*(\omega_1)$ を加え、通常の結晶光学の方法を適用すればよい。

光の伝搬に対する非線形屈折率の効果は、空間と時間で

分けて考えることができる。絞られたガウスビームのように、空間的に強度分布が分布すると、それに応じて屈折率が変化し、屈折率分布型レンズのように作用する。ほとんどの物質で非線形係数 n_2 は正になるので、これは凸レンズになり、入射光は収束する。これを自己収束という。自己収束により中心強度は増大するから、さらに屈折率変化が増大し、より強く収束する。このような正のフィードバックが強く働くとビーム伝搬は不安定になる。実際、非常に強い光パルスが媒質に入射すると、非線形効果によりビームの波面が乱れ、ランダムなパターンに変化する。その結果、入射光はフィラメントとよばれる小さな部分に分割されてしまう。そこまでいなくても、光パルスに対しては多かれ少なかれ自己収束が起こっていると考えなくてはいけない。

次に、時間領域における効果を考えよう。光パルスの伝搬は、波動ベクトル \mathbf{k} で決まると考えてよい。非線形屈折率効果を考慮すると、 \mathbf{k} が光強度に依存するようになる。それを

$$\mathbf{k}_{NL} = \frac{\omega}{c} (n_0 + n_2^E |E|^2) = \mathbf{k} + \gamma |E|^2 \quad (15)$$

と書こう。これにより、パルスの搬送周波数の位相が強度波形に比例した変調（自己位相変調）を受ける。この結果、パルスの内部で搬送周波数が変化することになる。これをパルスのチャーピングという。この現象は、結果的にパルスのスペクトルを広げることになる。スペクトル幅が広がれば、整形することにより、パルス幅を縮めることができる。これをパルス圧縮といい、超短パルスを得る技術として常用されている。

群速度は $dk/d\omega$ の逆数で与えられるから、波数が強度依存性をもてば、群速度も同じように強度依存性をもつことになる。これはパルスの包絡線の形を変える。非線形係数が正の場合、光の強いところで群速度は遅くなる。よって、単峰性のパルスでは、ピーク付近が裾の部分に比べて遅くなり、ピークが相対的に後にずれる。その結果、パルス前半部分はなだらかになり、後半は急峻になる。これをパルスの自己急峻化という。

10. 非線形項の大きさ

二次の非線形感受率は電場の逆数の次元をもつ。物質内部で電子を感じる電場は、内殻電子で遮蔽された原子核によるクーロン電場である。陽子の場合、ボーア半径 (0.05 nm) だけ離れた位置での電場は、およそ 0.5×10^{10} V/cm = 0.5 V/pm である。よって、その逆数は 2 pm/V になる。よく使われる非線形光学結晶の $\chi^{(2)}$ は数 pm/V か

ら数十 pm/V であるから、妥当な評価になっている。一方、光の電場は、強度が 1 MW/cm^2 のとき、真空中で 28 kV/cm である。光電場とクーロン電場の比は、およそ 10^{-5} となる。これが、非線形光学効果を摂動と考えたときの大きさを与える。この値は小さいが、非線形光学効果はコヒーレントな過程であるため、振幅が伝搬距離に比例して増え、したがって強度は 2 乗で増大する。その結果、高い変換効率が実現する。

三次の非線形効果は、摂動展開の次の次数で与えられるから、上の数値例では、項の大きさは 10^{-10} 程度となる。よって、強度が 1 MW/cm^2 では、よほど長距離を伝搬するのでない限り無視できる。ところが、大出力のレーザー光を絞り込んだ場合や、あるいは、超短パルスでは、ピーク強度は GW/cm^2 から TW/cm^2 の領域に入ってくる。ここまで強くなると、三次の効果も顕著に現れるようになる。これは非共鳴の場合であるが、共鳴周波数に近づくと、非線形感受率は大きくなる。

おもに二次の非線形光学効果を用いた波長変換について議論した。原理的なことはすでに明らかになっているが、レーザー技術の進歩に追随してコンパクトで高効率のコヒーレント光源の実現に不可欠の技術となっている。三次の非線形光学効果は多彩であるが、ここでは、波長変換に関連して非線形屈折率効果のみを取り上げた。他の現象については、しかるべき専門書を参照してほしい。

注 原稿提出後に、緑色半導体レーザー発振に成功したとの報告があった¹³⁾。

文 献

- 1) P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich: "Generation of optical harmonics," *Phys. Rev. Lett.*, **7** (1961) 118-119.
- 2) 黒田和男: 非線形光学 (コロナ社, 2008).
- 3) D. L. ミルズ (小林孝嘉訳): 非線形光学の基礎 (シュプリンガー・ジャパン, 2008).
- 4) 小川智哉: 結晶工学の基礎 (裳華房, 1998).
- 5) J. M. Manley and H. E. Rowe: "Some general properties or nonlinear elements. Part I: General energy relations," *Proc. IRE*, **44** (1956) 904-913.
- 6) J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Pershan: "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," *Phys. Rev.*, **127** (1962) 1918-1939.
- 7) G. P. Agrawal: *Nonlinear Fiber Optics*, 4th ed. (Academic Press, 2007) p. 440.
- 8) P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenoff and C. M. Savage: "Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics," *Phys. Rev. Lett.*, **8** (1962) 21-22.
- 9) M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh and K. Watanabe: "First-order quasi-phase matched LiNbO_3 waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation," *Appl. Phys. Lett.*, **62** (1993) 435-436.
- 10) 宮澤信太郎, 栗村 直 (編): 分極反転デバイスの基礎と応用 (オプトロニクス社, 2005).
- 11) V. Berger: "Nonlinear photonic crystals," *Phys. Rev. Lett.*, **81** (1998) 4136-4139.
- 12) V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan and D. N. Nikogosyan: *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, 2nd ed. (Springer, 1997).
- 13) T. Miyoshi, S. Masui, T. Okada, T. Yanamoto, T. Kozaki, S. Nagahama and T. Mukai: "510-515 nm InGaN-based green laser diodes on *c*-plane GaN substrate," *Appl. Phys. Express*, **2** (2009) 062201.

(2009 年 4 月 3 日受理)