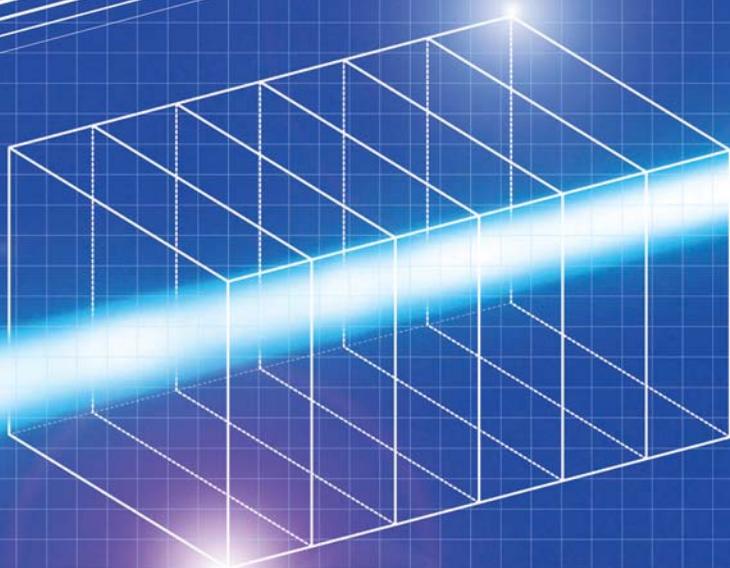


Introduction to
Nonlinear Optics

入門

まるわかり
非線形光学

黒澤 宏 著



オプトロニクス社

入門

まるわかり

非線形光学

黒澤 宏 著

まえがき

拙著「レーザー 基礎の基礎(オプトロニクス社)」を1999年に世に出して、レーザーに親しみを覚えていただけたと思っています。これからレーザーや光学に関する仕事や研究に従事しようとする人、すでにレーザー関連の技術者として仕事をしているが、レーザーの基礎についてかっちりと勉強したことがない人、あらためてレーザーについて勉強を始めてみたい人、などにレーザーを身近に感じていただけたと思っています。今回、同じ視点から、非線形光学に関する本を書くことになりました。時には、数式を使うこともありますが、できるだけ平易な文章でお話ししようと思っています。少なくとも、中学程度の知識でも読み進めるように。ちょっとでも、レーザー並びに非線形光学に親近感を持っていただくために。物理の知識をお持ちの読者は、ところどころ読み飛ばしていただいて結構です。

「光」は電磁波の仲間です。「電波」も電磁波の仲間です。電波と光は波長あるいは周波数の範囲で呼び名が違います。電磁波を波長ないしは周波数で区分すると、図1ようになります。波長が長い「電波」の世界では、もっぱら「周波数」が使われます。例えば、NHK第一放送で利用している電波の周波数は540 kHz(キロ, 10^3 , ヘルツ), FM放送は77 MHz(メガ, 10^6), 携帯電話で使っているのは1.5 G(ギガ, 10^9) Hzのマイクロ波と言う具合です。光も電波も同じ仲間ですが、光の周波数が高すぎて、周波数で区別するよりも波長で言う方が便利です。例えば、波長が1 mm(マイクロ, 10^{-6} , メートル)の赤外光, 緑の光は500 nm(ナノ, 10^{-9} , メートル)の光と言うように。ちなみに、1 mmの波長の光の周波数は 3×10^{14} Hzに相当します。目に見える光の波長範囲は0.7 ~ 0.4 mmです。波長が長い方から「赤橙黄緑青藍紫」の七色の順番の色に相当します。太陽の光をプリズムを通してみると、この七色に分かれて見えます。プリズムの屈折率が波長によ

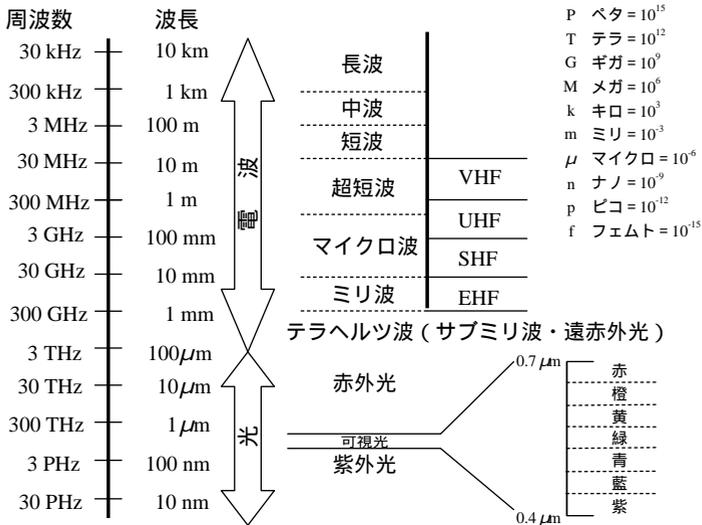


図1 電磁波の波長と周波数

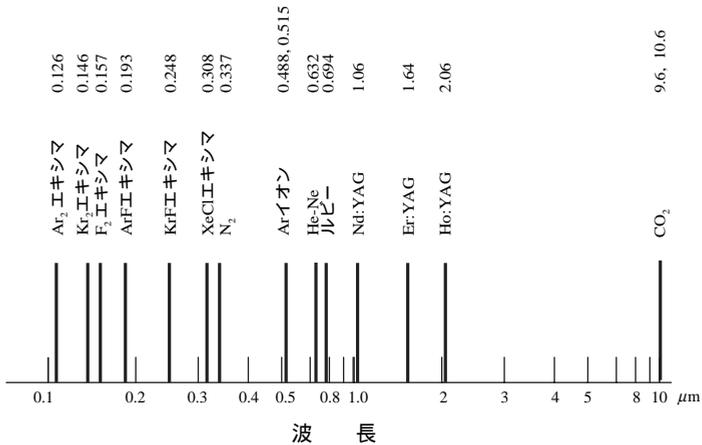


図2 代表的なレーザーと発振波長

て変化する性質を利用して、光を波長によって分解する道具がプリズムです。

光が空気中を伝搬するときは「波」としての性質を持っていますが、非線形光学効果を考える際には、少し異なった考え方をしなければなりません。物質は多数の原子から構成されています。光が物質の中の原子に入ると、原子を構成している電子に力を及ぼし変位させます。

電子は光電界と同じ周波数で往復振動します。一方、原子核は重いので動きません。その結果、原子から入射光と同じ周波数を持つ光が放射されます。入射光の電界が強い場合、電子の振動振幅が大きくなり過ぎて対称振動が出来なくなり、非対称な運動をします。この非対称振動には入射光と同じ周波数成分とともに異なる周波数成分が含まれています。後者が非線形光学効果の源点です。このような原子と光の視点から物質と光を考えなければなりません。

レーザーは光の中でも特殊な部類に入ります。が、非常に役に立っている光です。レーザーも物質と光の相互作用の結果、現われる光です。レーザーのお陰で、光の時代が到来したといっても過言ではありません。代表的なレーザーを列挙したのが図2です。発振波長を横軸にとって描いてあります。全てのレーザーを記入してはおりません。また、半導体レーザーの種類は多いので、これも記入してはおりません。図から分かるように、レーザーの発振波長は、波長の全範囲にわたって存在している訳ではありません。言葉を換えて言えば、欲しい波長のレーザー光が手に入るわけではありません。レーザー光として発振する波長は飛び飛びの値しか存在しません。これがレーザーの特徴でもあり欠点でもあります。この欠点を補う技術が、これからお話する「非線形光学」です。非線形光学は、技術として非常に役に立つだけではありません。物理的に奥深いものがあります。これを知っていただくのがこの本の目的です。

2008年5月

黒澤 宏

- 目 次 -

第 1 章 非線形光学事始め	1
1. はじめに	1
2. レーザー光の性質	1
3. 非線形光学とは	3
4. 物質と光	6
5. 電子の非線形振動	9
6. 分極と光の発生	11
7. 二次非線形光学効果	16
7.1 第二高調波発生 (Second Harmonic Generation)	16
7.2 和周波発生 (Sum Frequency Generation) と 差周波発生 (Difference Frequency Generation)	18
7.3 光パラメトリック発振	22
8. 三次非線形光学効果	24
8.1 第三高調波発生	24
8.2 強度依存屈折率	25
8.3 四波混合	27
9. おわりに	29
第 2 章 数式で理解する非線形光学	30
1. はじめに	30
2. 電子と電界, 磁界	32
3. 電磁波の発生	35
4. 位相整合条件	39

5. 和周波発生 (SFG) にみる非線形波動	41
6. 第二高調波発生	45
7. 偏光と複屈折	49
8. 位相整合の取り方	58
9. おわりに	62

第 3 章 非線形光学結晶を理解するための結晶学

1. はじめに	64
2. 二次非線形光学定数	65
3. 単結晶	68
3.1 結晶の対称性	68
3.2 結晶格子	73
3.3 結晶の方位と結晶面	76
4. 結晶系と結晶点群のまとめ	79
5. 対称中心を持つ結晶の非線形光学効果	81
6. 対称性と非線形光学効果	84
7. 複屈折と疑似位相整合	88
7.1 複屈折	89
7.2 疑似位相整合 (Quasi-Phase Matching)	92
8. おわりに	95

第 4 章 非線形光学結晶いろいろ

1. はじめに	98
2. 非線形光学結晶	99
2.1 水晶	99
2.2 KDP (2水素リン酸カリウム)	100
2.3 ボレート (ホウ酸塩) 系	101
2.4 ニオブ酸, タンタル酸系	102
2.5 KTP 系	104
2.6 赤外波長域用	104
3. 結晶成長法	105
3.1 溶液成長法	105

3.2 融液成長法	107
4. 第二高調波発生	108
4.1 変換効率	108
4.2 非線形光学結晶の使い方, 選び方	109
5. 二次非線形光学定数の測定	112
6. 擬似位相整合構造作製技術	115
7. まとめ	118

第 5 章 レーザー光を制御する技術 (電気光学効果の巻) 120

1. はじめに	120
2. 波長板	120
3. ポッケルス・セル	124
4. カー効果	127
5. 光変調素子	128
6. まとめ	131
[Column1] 波の基本形式	132

第 6 章 屈折光学素子と非線形光学 135

1. はじめに	135
2. レンズと屈折	135
3. 光強度依存屈折率	142
4. 自己集束	145
5. おわりに	147
[Column2] プリズムと虹	147

第 7 章 反射鏡と位相共役鏡 150

1. はじめに	150
2. 反射の法則	151
3. 位相共役波の性質	153
4. 位相共役波の発生	158
5. おわりに	161
[Column3] 「Fナンバー」	163

第 8 章 誘導光散乱と位相共益波発生	165
1. はじめに	165
2. 光散乱とは?	165
3. 誘導ブリルアン散乱とは?	168
4. 誘導ブリルアン散乱 (SBS) 増幅器	171
5. SBS 発生器と位相共役鏡	175
6. 音響光学素子	178
7. おわりに	183
第 9 章 誘導ラマン散乱： 波長変換とガス分析への応用	184
1. はじめに	184
2. ラマン散乱	185
3. 誘導ラマン散乱	190
4. コヒーレント反ストークスラマン分光 (CARS: Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy)	194
5. おわりに	196
[Column4] デシベル単位について	197
第 10 章 フォトリフラクティブ効果と その応用	199
1. はじめに	199
2. 半導体結晶の電子構造	200
3. フォトリフラクティブ効果	207
4. 応用	214
4.1 二光波混合 (光による光増幅)	214
4.2 四光波混合 (位相共役鏡)	215
5. おわりに	218
第 11 章 非パラメトリック非線形光学過程 —可飽和吸収と二光子吸収—	219
1. はじめに	219

2. コンピューターと論理回路	220
3. パラメトリック過程と非パラメトリック過程	224
4. 可飽和吸収	227
5. 光双安定スイッチ	229
6. おわりに	234
[Column5] 開口数 (NA)	235

第 12 章 磁気と光の関係

1. はじめに	237
2. 電流と磁界 (磁界, 磁束密度, 磁化)	238
3. 磁性体について	242
4. 磁気と光学 (ファラデー効果とコットンムートン効果)	247
5. 非線形磁気光学効果	256
6. おわりに	256

第 13 章 光ファイバーにおける非線形光学

1. はじめに	258
2. 平行平板導波路	259
3. 光ファイバー	263
4. 光ファイバーにおける群速度分散と自己位相変調	267
5. 光パルス (時間パルス幅とスペクトル幅)	274
6. パルス伝搬と光ソリトン	280
7. パルス圧縮	286
8. おわりに	292

第 14 章 イメージングにおける非線形光学

1. はじめに	294
2. 顕微鏡について	295
3. レーザーと顕微鏡	299
4. 近接場光学顕微鏡	304
5. テラヘルツ波イメージング	308
6. おわりに	310
[Column6] 分解能 (解像度)	311

非線形光学事始め

1 はじめに

まず、非線形光学効果について、簡単に説明をしたいと思います。光の電界が原子の中の電子に力を及ぼして変位させ、その結果物質中に分極が生じます。分極の振動が新しい光の発生源となります。物質に光を入れると、新しい光の中に元の光の周波数と異なる成分が含まれることがあります。これが非線形光学効果です。ここでは、「分極」の概念を導入して、二次非線形光学効果と三次非線形光学効果の中から、代表的ないくつかの例についてざっとお話しします。

2 レーザー光の性質

レーザーの発達は1961年にアメリカのメイマンがルビーレーザーの発振に成功したことに始まります。しかし、その基礎理論は40年以上も前の1916年にアインシュタインが発表していたのです。詳しいことは「レーザー基礎の基礎」¹⁾を見ていただくことにして、レーザーの特徴を簡単に挙げると、図 1.1 に描いてあるように、指向性、干渉性、集光性、そして単色性です。指

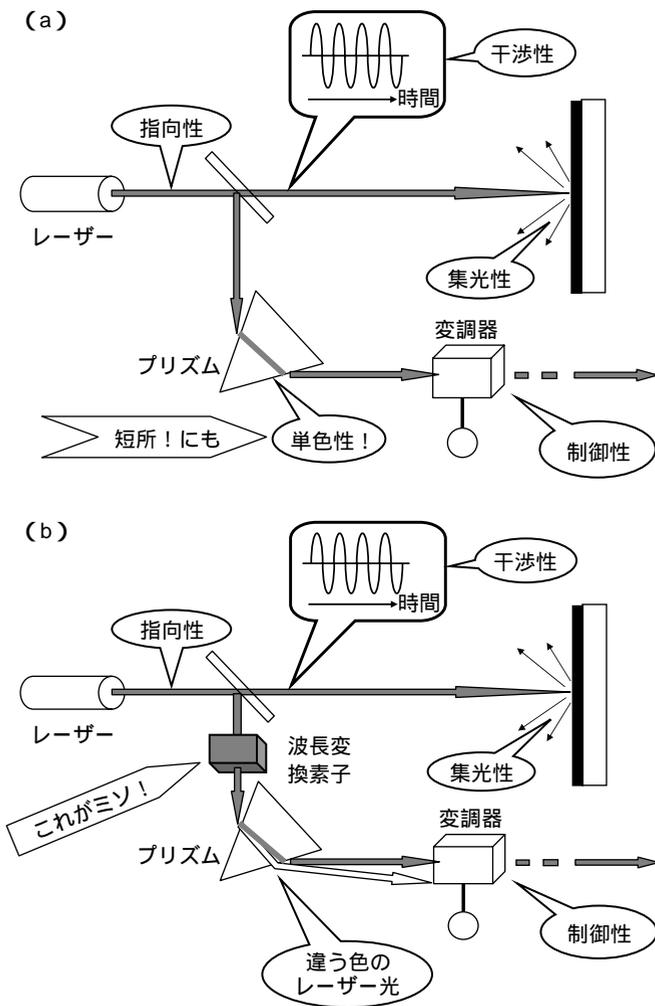


図1.1 (a)レーザーの特徴：指向性，干渉性，集光性，単色性，制御性
 (b)レーザーの欠点である単色性を補う方法：非線形光学素子

向性とは、光がほとんど広がらずに真っ直ぐ進むことを言います。干渉性とは、光の位相（波の山と谷）が揃っているため、狭いスリットを通すと、光

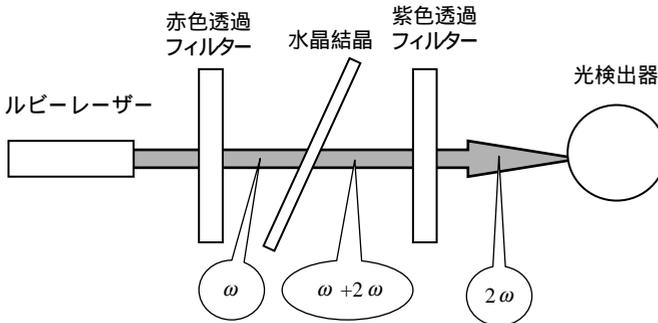
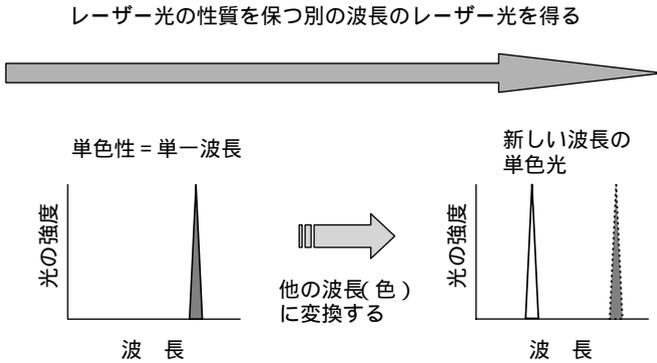
の強弱の縞模様が鮮明に見えることを言います。高輝度とは、指向性がよいので単位面積あたりの光強度が強いことですが、レンズで集光すれば、太陽光の何百倍ものパワーを得ることが可能です。すなわち、エネルギーを一点に集中することが可能なのです。単色性とは、レーザー光にいろいろな光が混じり合わずに純粋な一つの色（波長、周波数）の光であることを言います。逆に言うと、普通の光はほとんどあらゆる波長の光の集合と言えるでしょう。

レーザー光は図1.1に描いてあるように、正弦関数（ \sin 関数）で書くことが出来る光ですので、外部から信号を加えることによってその振幅や位相を変えることができます。これを「制御性」が高いと言います。

レーザーは原子の中の電子のエネルギー状態の変化を利用しますので、発振できる光の波長（周波数）は利用する原子の種類によって決まっています。レーザーとして利用できる原子の種類には限りがありますので、まえがきの図2に描いてあるように、レーザー光として手に入れることができる波長には限りがあることとなります。横軸に波長を取って、現在発振している代表的なレーザーを書いてみると、ほんとうに飛び飛びというか、空白部分が多いことに驚かされます。すなわち、単色性がレーザーの最大の欠点にもなっているのです。ある特定の波長のレーザー光を使いたいとしても、見あたらない場合が多いのです。でも、レーザー光の性質を持った任意の色の光を使いたい場合が多いことは想像に難くありません。そこで登場するのが「非線形光学」です。すなわち、非線形光学効果を利用することによって、レーザー光から波長の異なったレーザー光を作ることができるのです。これからこの「非線形光学」の仕組みに入っていくことにしましょう。

3 非線形光学とは

非線形光学をやさしく解説することが本書の主な目的です。非線形光学効果は、物理現象そのものの応用範囲を格段に広げています。レーザー光の波



長を変えるだけでなく、物理の測定や通信にも応用されています。非線形光学効果を幅広くとらえて、できるだけ全体像をお話したいと思っています。

図 1.2 に描いてあるように、好みの波長のレーザー光を作るのが非線形光学効果です。レーザーに限りませんが、非線形効果は非常に便利で幅広く応用されている現象です。レーザーの発明と同じく、非線形光学そのものは古くからありました。しかしながら、何と言っても非線形光学効果の、特に実験的研究が進んだのはレーザーの発明があってからでした。1961年に

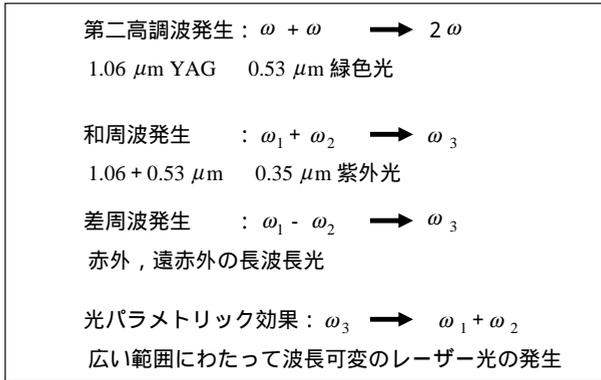


図 1.4 いろいろな非線形光学現象の例

Franken ら²⁾ がルビーレーザーから得られた $\omega = 694 \text{ nm}$ の波長の赤色光を水晶の結晶に照射したとき、波長が半分の $2\omega = 347 \text{ nm}$ の紫外光を観測したのが、「第二高調波」の最初です。このときの実験配置を図 1.3 に描いてあります。この波長変換の代表例を図 1.4 に挙げてあります。Franken らの最初の実験にある、元のレーザー光の半分の波長（二倍の周波数）のレーザー光を作るのが「第二高調波発生」です。例えば、1.06 μm の Nd ; YAG レーザー光から、0.53 μm の緑色のレーザー光を作ることができます。二つの異なる波長のレーザー光からちょうど波長の和に等しい光を作るのが「和周波発生」です。YAG レーザー光とその第二高調波である 0.53 μm の光を使って、0.35 μm の紫外光を発生させることができます。周波数で足し算しますので、 $1 / 1.06 \mu\text{m} + 1 / 0.53 \mu\text{m} = 1 / 0.35 \mu\text{m}$ と計算します。差の周波数の光を作るのが「差周波発生」です。周波数で引き算しますので、波長で言えば長い光を作ることができ、可視域のレーザー光から赤外や遠赤外波長範囲のレーザー光を作る際に利用されます。一つの光を二つの周波数の光に分解するのが「光パラメトリック効果」です。温度や角度を変えることによって、発生する波長を自由に変えることができますので、大変便利な道具にな

- ・水晶 (α -SiO₂)
- ・KDP (KH_2PO_4)リン酸二水素カリウム
- ・KTP (KTiOPO_4) 米国, デュボン)
- ・LN (LiNbO_3)ニオブ酸リチウム
- ・BBO (β -BaB₂O₄)ホウ酸バリウム (中国, 福建)
- ・LBO (LiB_3O_5)ホウ酸リチウム (中国, 福建)
- ・CLBO ($\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$) 阪大, 佐々木)
- ・有機結晶, ポリマー他

図1.5 いろいろな非線形光学結晶の例

っています。

これら以外にもたくさんありますが、レーザー光の波長変換にはもっぱらこの四種類の効果が利用されています。さらに、波長変換に利用されている代表的な非線形光学結晶を図1.5に列挙してあります。これ以外にも非常にたくさんの結晶が利用されています。このような非線形光学効果の基となる物理現象については次章以降に回すことにして、まず、はじめに非線形光学効果が生じる原因についてお話ししましょう。

4 物質と光

光は「電磁波」の一種です。ある波長範囲にある電磁波を光と呼んでいます。電磁波とは、読んで字のごとく、電界と磁界の波のことです。光が原子に入射すると、もっぱら光の中の電界が作用します。図1.6(a)に描いてあるように、原子はその中心に((正)プラスの電荷を持つ)原子核があって、その周りに((負)マイナスの電荷を持つ)電子が雲のように存在しています。簡単のために、電子は球形に分布しているとしましょう。光を構成している電界が原子の中の電子に力を及ぼします。原子核にも力を及ぼすのです

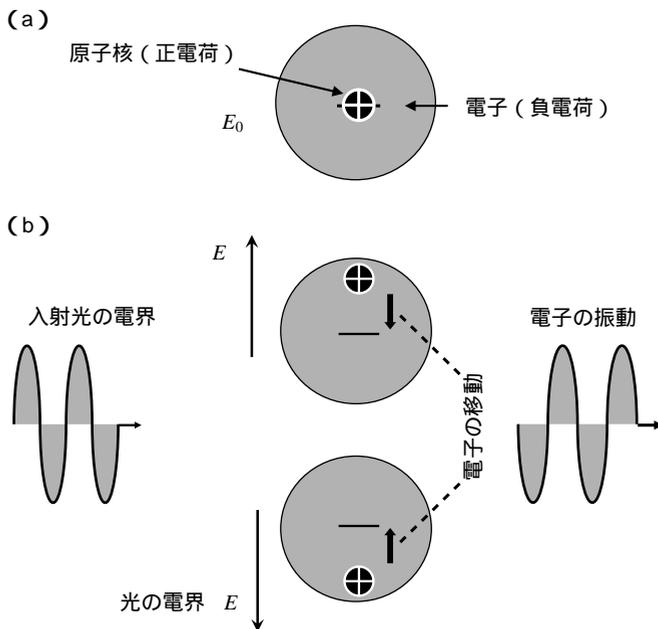


図 1.6 原子と光

が、電子に比べて格段に重い原子核は動きません。動くのはもっぱら電子です。電子はマイナス電荷ですから、電界と逆方向に（電子の電荷） \times （電界の強さ）に相当する力を受けます。すると、電子は力を受けて元の位置から少しずれた位置に移動します。図 1.6 (b) の上の図では、 $-$ で示す電子は $+$ で示す原子核に比べて下の方向に移動しています。時間がたつて、電界の方向が逆になれば電子に働く力の方向も逆になり、先ほどとは逆の方向に移動します。このときの様子は図 1.6 (b) の下の図に相当します。光の電界は、1 秒間に周波数に相当する 10^{14} 回以上向きを変えますので、電子もこれと一緒にあって行ったり来たりの運動をすることになります。このような電子の振動運動は、電磁波を発生します。電磁波の周波数は電子の運動周期と同じですので、ここで発生した電磁波はもとの電磁波の周波数と同じ周波数をも

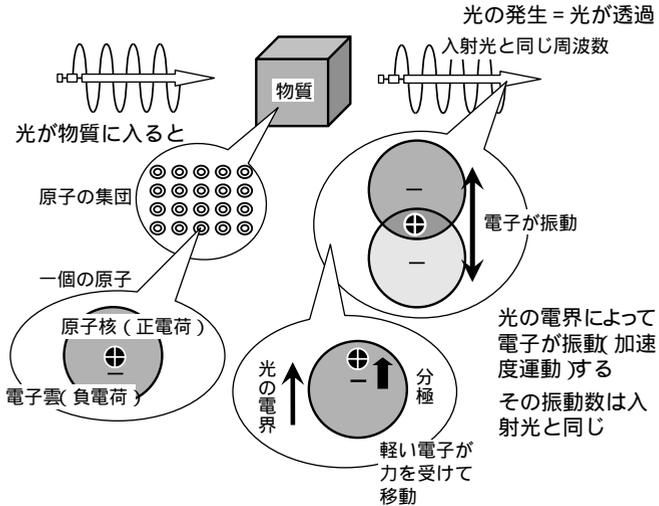
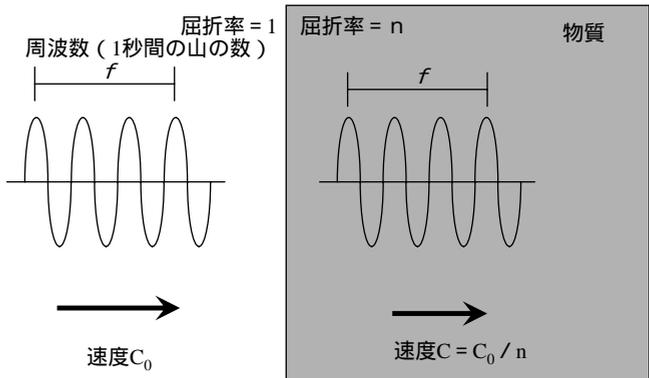


図1.7 物質中に入った光の動き

っていることとなります。このように、物質と光の関係を理解するためには、原子の構造，電子と電荷，電子に働く力，電界，磁界などの知識が必要になってきます。中学が高校を思い出してください。（このような言葉は後で，詳しくお話ししましょう。このような言葉に慣れ親しんでいる人は，その節を飛ばしていただいて結構です。でも，今一度復習の意味合いで読んでいただければ幸いです。）

物質を細かく見ると，原子の集団です。結晶では，原子が規則正しく配置されています。その原子を一個取り出してみましょう。光の中の電界が一個一個の原子に作用して，原子の中の電子に力を及ぼします。原子の集合である固体（結晶）の場合，固体に入射した光が，固体を作っている原子の中の電子に振動運動を誘起することによって，もとの電磁波と同じ周波数の電磁波が固体から出てくることとなります。個々の電子の運動に注視しないでおくと，この現象はあたかも固体に入射した電磁波が透過したように見えます。固体に吸収のない場合は，このとおりの現象が起こっており，何事もなかつ



物質中では、光の速度は $1/n$ に減速される

図 1.8 屈折率

たように、電磁波の透過が起こります。このことを絵に描いたのが図 1.7 です。物質に入った光と同じ周波数の光が出てくるのですが、光の電界 電子の振動 光の発生、の一連の動作が物質内で起こるのには、ちょっと時間がかかります。そのために、物質の中に入った光の伝わる速さは、空気中より遅くなります。この光の速度の比が「屈折率」です。空気中での光の速度を屈折率で割った値が、物質中での光の進む速さです（図 1.8）。光の電界による電子の運動が、周囲の影響を受けず、しかもどの方向にも制限を受けることなく、移動距離が力に比例する範囲にある場合は、単に光の透過現象が生じるだけですが、電子の運動が不規則になったり、制限を受けたりする場合があります。大なり小なり、影響を受けつつ運動をしていると言っても過言ではありません。この不規則性が非線形光学効果の源です。

5 電子の非線形振動

電磁波の電界強度が強く、電子を大きく振動させる場合、その運動がある

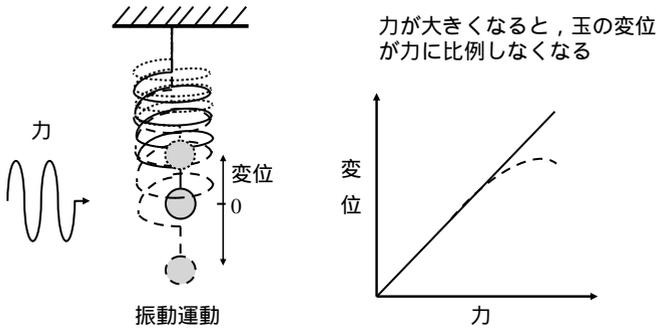


図1.9 非線形振動

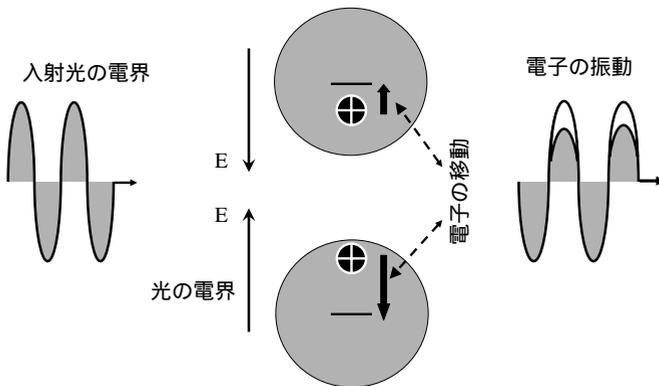


図1.10 原子内の電子の非線形振動

程度制限されることが起こります。図1.9のように、天井から球をぶら下げたものを考えましょう。この球に下向きのを力を加え、引っ張って振らせます。力が小さい間は、加えた力に比例した振幅で振動します。力が大きくなり、球を大きく振らせた場合を想像してみてください。振らせる振幅が大きすぎた場合は、力を加えたわりには、その振動振幅が大きくなることはないでしょう。図1.9のように振幅が加えた力に比例しなくなる現象を総称して

「非線形効果」と呼んでいます。原子内の電子についても同じことが起こります。原子の中の電子に光の電界で力を加えた場合を詳しく見てみましょう。

図 1.10 は、一個の原子に光の電界が作用した状態を描いてあります。原子の中の電子が電界による力を受けて、原子核から離れる方向に移動します。電界の方向が逆になれば、電子の移動方向も逆になります。ところで、物質の中の全ての原子が同じ状態にあるとは限りません。周囲に存在する原子の種類や配置によっては、原子内の電子に同じ力が加わったとしても、電子の振動はあらゆる方向に同じとは限りません。さらに、電子といえども無限の振幅で振らせることはできません。加えた力と振動振幅が比例しなくなる現象が生じます。更には、図 1.10 に描いてあるように、ある方向には線形振動をしたとしても、逆の方向には振動に制限が加わって線形振動からずれることがあります。光の電界が正弦波のように変化したとすると、電子の振動は正弦波からずれることになります。正弦波（ \sin 関数）からずれるということは、異なる周波数を持つ正弦波の和から合成された波に相当します。こうなると、固体から出てくる電磁波も、元の電磁波と同じ周波数成分だけではなくなります。これが「非線形光学効果」です。結晶の中の原子の配列や原子の配置によって、通常は、二次、三次の項を含むようになります。この詳しい話は、多少とも数学的表現を使わなくてはなりません。

6 分極と光の発生

光が物質中を通過するとき、光の電界成分が物質を構成している原子の中の電子に力を及ぼし、移動させます。図 1.11 には、電界の中にある原子の中の様子が書いてあります。外から電界が働かない場合、正電荷を持つ原子核と負電荷を持つ電子は、その中心位置が同じところにあり、外から見たとき正負の電荷が打ち消しあって中性になっています。そこに電界 E が働いた場合、原子核も電子も電界から力を受けて、お互いに逆方向に動きそうですが、

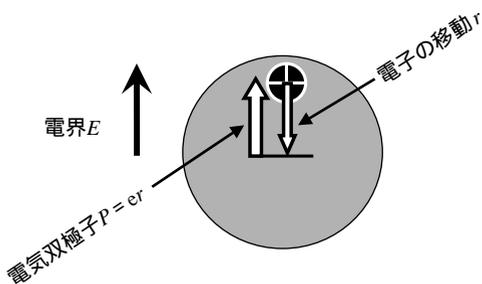


図1.11 電界によって原子中に作られた電気双極子

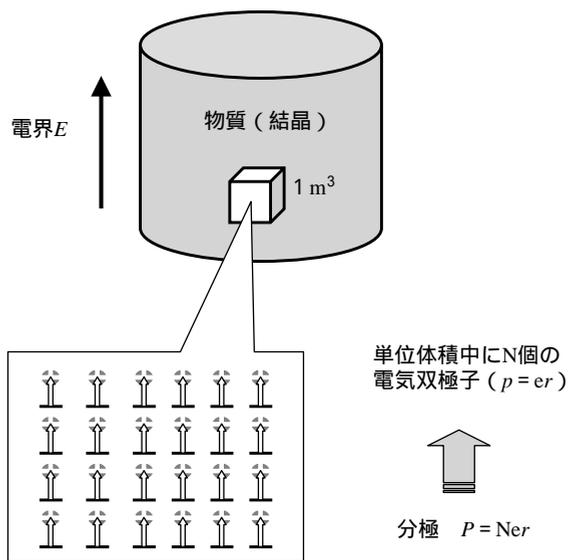


図1.12 電界によって物質中に作られた分極

原子核は非常に重いので、ほとんど動きません。一方、電子は軽いので、電界の力 ($F = eE$) によって移動します。図には電子の中心位置が r だけ移動した絵が書いてあります。すると、正電荷の原子核と負電荷 e の電子が、相対的に r だけ距離を置いて存在することになります。このとき、 $p = er$ の「電

気双極子」ができたと言います。方向としては、負電荷から正電荷に向かう向きを正とします。図 1.12 のように、物質の中には無数の原子、すなわち電気双極子が存在しています。そこで、単位体積あたりの電気双極子を「分極」と呼ぶことにします。すなわち、分極とは電気双極子密度のことなのです。

光の電界による力を受けて電子が変位した場合、光の電界は1秒間に 10^{14} 回振動していますので、電気双極子もこれと同じ回数だけその向きを逆転させることとなります。すなわち、電気双極子、言い換えれば分極が光の振動数で振動するのです。振動する分極は電磁波を発生します。(この点については、次章で詳しくみてみることにします。ここでは、振動分極が電磁波を発生するとだけ理解しておいてください。)

一個の電気双極子は、原子一個の話ですから、極めて小さいものですが、分極となると、目に見える話になってきます。電子の移動する距離は電界の大きさによって変わりますから、電気双極子、すなわち分極の大きさも電界によって変わることを意味します。これを式で書いたのが式(1.1)です。通常、分極の大きさ P は、電界の強さ E に比例します。式で書くと、

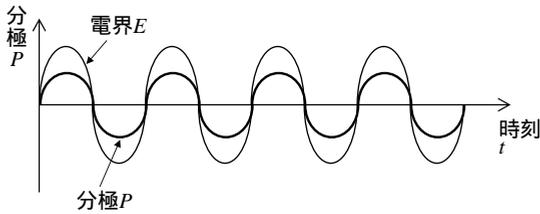
$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E \quad (1.1)$$

となります。 ϵ_0 は「誘電率」と呼ばれる量で、物質の電氣的性質を表します。 $\chi^{(1)}$ は「電気感受率」を呼ばれる量で、電界をかけたときにどれ位分極するかを表す量です。

電界の強さが小さくて、電子の変位量も小さい間は、電界に追従して電子が動くこととなります。一方、電界が強くなってくると、電子の動きも電界に追従できなくなってきます。電界として、光の電界を考えましょう。光の電界は周期的に変化する波として表すことができますので、そのときの分極も波として書くことができます。この様子を描いたのが図 1.13 (a) です。電界が小さい範囲では、分極の大きさは電界に比例しますので、電界と分極は同じ周波数で変化する波として描くことができます。式(1.1)を描いたもの

がこの図です。一方、光が強くなることは、電界が大きくなることを意味しています。電界が大きくなると、図1.13(b)に描いてあるように、分極の波は電界の波と形が変わってきており、ひずんだ波になります。分極の方向によって、大きさが異なることを意味しています。このときの分極の波は、

(a)



(b)

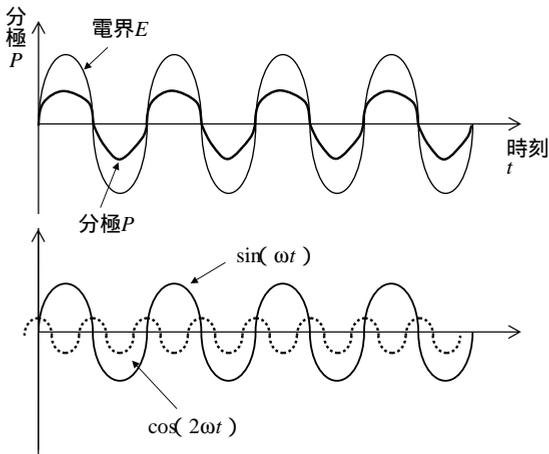


図1.13 (a) 電界に比例する分極の波 (b) 電界に比例しない分極
 (分極の波は、電界と同じ周波数で変化する成分と2倍の周波数で変化する成分に分けることができます。)

図に描いてあるように、電界と同じ周波数で変化する成分と電界の2倍で変化する成分の和になっています。このときの様子を式で表すと、

$$P = \varepsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}EE) = P_L + P_{NL}^{(2)} \quad (1.2)$$

と書くことができます。電界 E の二乗の項が二倍の周波数を表しています。波を式で書くと、

$$E = E_0 \sin(\omega t) \quad (1.3)$$

と書くことができますので、第二項は

$$\begin{aligned} EE &= E_0^2 \sin^2(\omega t) \\ &= \frac{1}{2} E_0^2 \{1 - \cos(2\omega t)\} \end{aligned} \quad (1.4)$$

となり、 2ω を含む項が現れてきます。 $\chi^{(2)}$ は、 $\chi^{(1)}$ の 2×10^7 分の一程度の大きさしかありません。電界が大きくならなければ、 $\chi^{(2)}$ の効果が目に見えないようにならないのはこのためです。この $\chi^{(2)}$ が、(二次の)非線形光学効果の原因なのです。これによる分極を $P_{NL}^{(2)}$ と書くこともあります。この $P_{NL}^{(2)}$ は二次の非線形光学効果を現しています。当然のことですが、 P_L は線形光学効果の項です。通常の光であれば、これだけが観測できます。

一般的に、分極の波が大きくひずむと、 $(2\omega t)$ だけでなく $(3\omega t)$ やもっと高次の項が無視できない大きさになってきます。このときの様子を式で書いたのが式(1.5)です。すなわち、分極 P と光の電界 E の関係を一般的な式で書くと

$$\begin{aligned} P &= \varepsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}EE + \chi^{(3)}EEE + \dots) \\ &= P_L + P_{NL}^{(2)} + P_{NL}^{(3)} + \dots \end{aligned} \quad (1.5)$$

です。 $\chi^{(1)}$, $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$...はそれぞれ、線形感受率、二次非線形感受率、三次非線形感受率です。 $\chi^{(3)}$ の大きさは、 $\chi^{(2)}$ の 2×10^7 分の一程度ですから、二次の場合よりも大きな電界、すなわち強い光の場合に現れてきます。 $\chi^{(2)}$ が EE の比例定数で、これから $(2\omega t)$ の項を導き出しましたので、 $\chi^{(3)}$ は EEE の項、すなわち $(3\omega t)$ の項をもたらすことが容易に推測できます。ところで、 $\chi^{(2)}$ に比例する二次非線形光学効果の項の大きさが $\chi^{(1)}$ の線形効果と同じ大きさになるためには、 $E = 2 \times 10^7$ V/cmの大きさの電界が必要になります。この電界を光の強度に直すと、 $W \sim 10^{13} \sim 10^{14}$ W/cm²となります。この光の強度を実感することは難しいのですが、地表における太陽光の強さは0.135 W/cm²です。これで上の値がどれほど大きいか想像できるでしょうか。こんな強い光もレーザーなら簡単に実現できるのです。

7

二次非線形光学効果

この節では、二次の非線形感受率 $\chi^{(2)}$ によって生じる非線形光学効果のいくつかの例についてお話しします。

7.1 第二高調波発生 (Second Harmonic Generation)

電界 E が、前の例にならぬ

$$E = E_0 \sin(\omega t) \quad (1.3)$$

と書くとしましょう。(波を三角関数を使って $\sin(\omega t)$ と書く代わりに、指数関数を使って $e^{-i\omega t} (= \cos(\omega t) + i \sin(\omega t))$ と書くことがよくあります。指数関数の方が計算は楽です。ただし、指数関数は虚数部を含んでいますが、現実の世界には虚数の世界はありません。指数関数の実部のみが意味を持つ

ていることに注意する必要があります。)分極の式(1.2)を使って、 $\chi^{(2)}$ を含む項には $\sin^2(\omega t)$ が現れます。三角関数の公式から、この項には 2ω の周波数で変化する成分が含まれていることがわかります。この二次の非線形分極が、物質に入ってきた光の2倍の周波数の光を作り出します。これが「第二高調波発生」です。

現時点では、加工や医療などに最も広く使われているNd:YAGレーザーは、ネオジウムイオン(Nd^{+2})をYAG(イットリウム-アルミニウム-ガーネット)結晶の中にばらまいたもので、ネオジウムイオンが発光するレーザーですが、赤外波長域の $1.06\ \mu\text{m}$ で発振するレーザーです。このレーザー光を、 $\chi^{(2)}$ がゼロでない結晶(第二高調波結晶)の中に通すことによって、二倍の周波数、すなわち二分の一の波長である $0.53\ \mu\text{m}$ の緑色のレーザー光を作り出すことができます。この緑色光はもとの赤外光と波長が異なる点を除けば、全く同じ性質を持ったレーザー光です。条件を整えてやれば、ほぼ100%の赤外光を緑色光に変換することも可能です。赤外と緑色に限りません。緑色のレーザー光からは、紫外光を作り出すことも可能です。第二高調波発生は、結晶一個で効率よくレーザー光の波長を変えることができますので、広く使われている方法です。緑色のレーザーポインターにも使われています。緑色の波長域で発振するレーザーを作ることは容易ではないことから、第二高調波発生を利用したものが広く使われています。

ところで、周波数(厳密に言えば、角周波数 $=2\pi\times$ 周波数)が ω の光は($h\omega$)のエネルギーを持っています。(hは、プランクの定数と呼ばれる量で、周波数をエネルギーに単位変換する定数です。さらに、波と粒子の性質を結びつける定数でもあります。)光は波の性質と粒子の性質の両方を持っていますが、波長は波としての性質を表す量、エネルギーは粒子としての性質を表す量です。すなわち、光の粒子は($h\omega$)のエネルギーを持っているのです。hを省略して ω のエネルギーを持つ光と表現することもあります。エネルギーを縦軸にとり、上に行くほど高いエネルギーを表すとしましょう。図1.14には、結晶中に ω の光が入ってくると、結晶の中には ω の光と 2ω

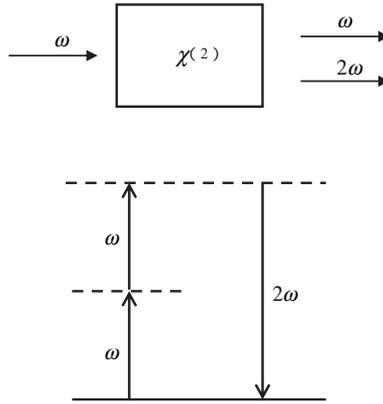


図1.14 第二高調波発生の幾何学配置とエネルギー関係

の3種類の光が存在することが描いてあります。3種類の光のエネルギーの関係は、当然

$$2\omega = \omega + \omega \quad (1.6)$$

ですので、結晶からは、 ω のエネルギーを持つ光と同時に 2ω の光も出てくることを意味しています。これが、光を粒子と見たときの第二高調波発生です。

7.2 和周波発生(Sum Frequency Generation) と差周波発生(Difference Frequency Generation)

$\chi^{(2)}$ を持つ非線形光学結晶の中に、 ω_1 と ω_2 の二種類の波長(エネルギー)の光が入射した場合を考えてみましょう。入射する光の電界を

$$E = E_1 \sin(\omega_1 t) + E_2 \sin(\omega_2 t) \quad (1.7)$$

と書くことにしましょう(単純な足し算ではなくベクトルの和ですので、大

きさと向きを考慮に入れなければならないことに注意して下さい)。二次非線形分極 $P_{NL}^{(2)}$ は

$$P_{NL}^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 \quad (1.8)$$

ですので、

$$\sin^2(\omega_1 t), \sin^2(\omega_2 t), \sin(\omega_1 t) \sin(\omega_2 t) \quad (1.9)$$

などの項が現れます。三角関数の公式を使って、積の項を分解すると

$$2\omega_1, 2\omega_2, \omega_1 + \omega_2, \omega_1 - \omega_2 \quad (1.10)$$

となり、これらの周波数で変化する項が含まれていることがわかります。すなわち、二種類の異なる周波数の光を結晶に入れた場合、第一項と第二項は第二高調波発生 (Second Harmonic Generation ; SHG)、第三項は和周波発生 (Sum Frequency Generation ; SFG)、第四項は差周波発生 (Difference Frequency Generation ; DFG) になることがわかります。いずれの場合も、非線形光学結晶の中には三種類の光波が共存しており、第二高調波発生も和・差周波発生も同じ種類の現象であることがわかります。しかしながら、波長の異なる光が同時に出てくることはありません。結晶の方位と光の電界の向き (偏光) の条件が満たされたものだけが強調されて出てきます。これは「位相整合」と呼ばれるもので、粒子の場合の運動量に相当する量です。すなわち、非線形光学現象では、エネルギーと運動量が保存されたものだけが許されるのです。まるで、二つの球が衝突する現象と同じことです。

図 1.15 に和周波発生の場合を、図 1.16 に差周波発生の場合のエネルギー図を描いてあります。和周波発生では、周波数が高くなります ($\omega_1 + \omega_2 > \omega_1, \omega_2$) ので、可視波長域の固定周波数のレーザーと周波数可変のレーザーを使

って、周波数可変の紫外レーザー光を作ることにも利用されています。一方、差周波発生の場合は、和周波発生と逆で ($\omega_1 - \omega_2 < \omega_1, \omega_2$)、波長が長い赤外レーザー光を作るのに便利です。

図 1.17 に、複数の非線形光学結晶を使って、 $1.543 \mu\text{m}$ の赤外レーザー光から、 $0.193 \mu\text{m}$ (= 193 nm) の紫外レーザー光を作る配置が描いてあります。

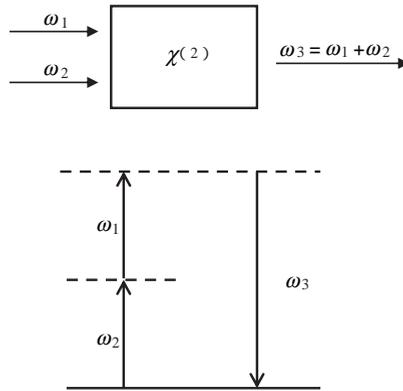


図 1.15 和周波発生の配置とエネルギー関係

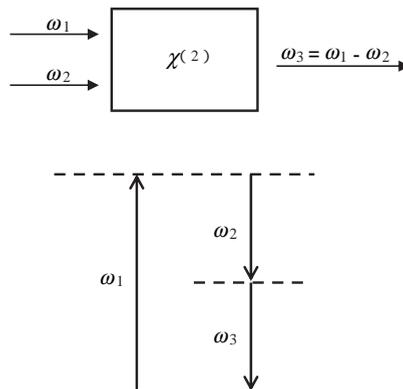


図 1.16 差周波発生の配置とエネルギー関係

まず、半導体レーザーとエルビウムドープの光ファイバー増幅器で $1.547\ \mu\text{m}$ の強い赤外光を発生させます。これをBBO（ベータ・バリウム・ポレート； $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ）非線形光学結晶による第二高調波発生によって $0.774\ \mu\text{m}$ （ ω 2ω ）の光を発生させます。この光の中には、ここで発生した 2ω 光と元の ω 光が含まれています。次に、二番目のBBO非線形光学結晶を使った和周波発生（ $\omega + 2\omega = 3\omega$ ）によって $0.516\ \mu\text{m}$ 光を発生させます。この結晶から出てきた光には、 ω 、 2ω 、 3ω の三種類の異なる周波数が含まれています。この光を ω 、 2ω 、 3ω の三つに分けて、そのうちの 2ω からLBO（リチウム・ポレート； LiB_3O_5 ）非線形光学結晶による第二高調波発生によって 4ω 光（ $0.387\ \mu\text{m}$ ）を作ります。次に、BBO非線形光学結晶による和周波発生によって、 $3\omega + 4\omega = 7\omega$ （ $0.221\ \mu\text{m}$ ）光を作ります。最後に、この 7ω 光と最初の ω 光を

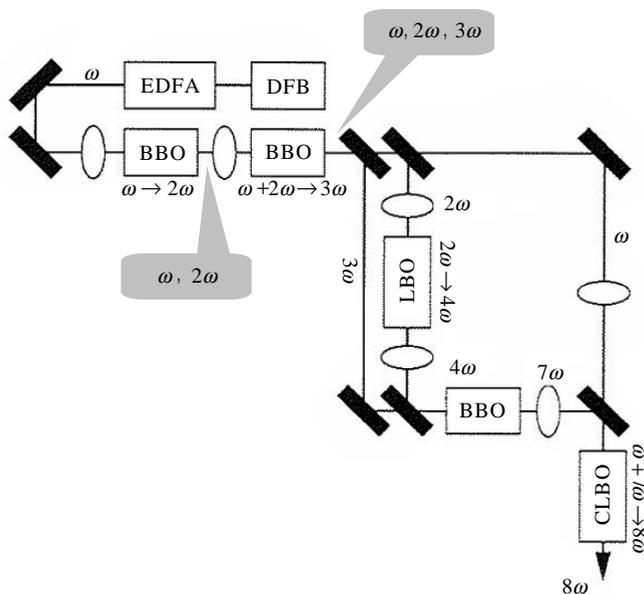


図1.17 第二高調波発生と和周波発生を利用して紫外レーザー光を作る方法³⁾：
DFB = 半導体レーザー，EDFA = 光ファイバー増幅器，BBO，LBO，
CLBO = 非線形光学結晶

CLBO (セシウム - リチウム - ボレート; $\text{CsLiB}_5\text{O}_{10}$) 非線形光学結晶中で混合して、 $\omega + 7\omega - 8\omega$ ($0.193 \mu\text{m}$) の紫外光を発生させます。 $0.193 \mu\text{m}$ といえば、半導体集積回路を作るのに使われ始めている ArF エキシマレーザの発振波長です。エキシマレーザのビームの質が良くないので、ここでお話ししたような固体レーザから得られる高品質の光を元に、波長変換技術を駆使して、その種光を作るのです。この種光を元にして、エキシマレーザで増幅すると、高品質で高出力の紫外レーザ光が得られるのです。波長変換によって、もとのレーザ光の強度からみれば、大幅にダウンしていますが、出力よりも品質が重要な場合には大変有効な方法であるといえるでしょう (非線形光学結晶については、第4章を見て下さい)。

この例に見られるように、差周波発生は長波長へのレーザ光の波長変換、特にレーザ発振が難しい赤外波長域におけるレーザ光発生に威力を発揮しています。

7.3 光パラメトリック発振

差周波発生には、第二高調波発生や和周波発生とは、本質的に異なるふるまいが現れます。すなわち、差周波発生 (図1.16) において、原子は ω_1 の周波数の光を吸収して、上のエネルギー状態に上がり、そこで持っているエネルギーを放出して異なる波長 ω_2 の光を放出します。これは ω_3 の存在がない場合でも起こります。これを別名「パラメトリック蛍光」と呼ぶ場合もあります。結晶に紫外光を照射すると、その紫外光とは異なる波長の可視ないしは赤外の波長の光を出す現象です。しかしながら、 ω_3 の光が存在する場合、それに刺激を受けて、強い発光が起こります。すなわち、入力光の ω_2 は $\omega_1 - \omega_3$ の過程によって増幅されるのです。

図1.18のように、非線形媒質に ω_1 の強いポンプ光と ω_2 の信号光を入射すると、差周波発生過程によって信号光が増幅されると同時に $\omega_3 (= \omega_p - \omega_s)$ の光 (アイドラ光と呼んでいます) が発生し、増幅されていきます。このよ

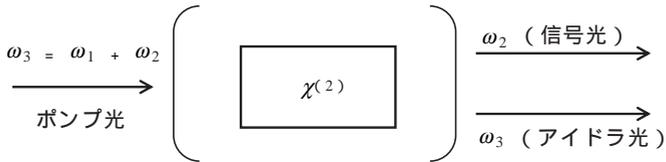


図1.18 光パラメトリック発振

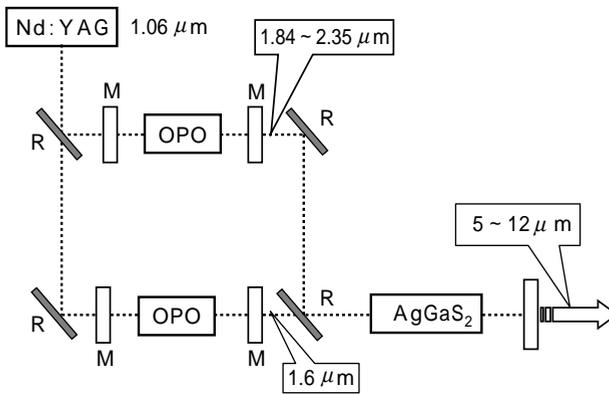


図1.19 光パラメトリック発生と差周波発生を利用した赤外波長可変レーザー⁴⁾
M = ミラー, R = 反射鏡, OPO = 光パラメトリック発振器 (非線形光学結晶)

うな過程を「光パラメトリック増幅」と呼んでいます。前節でお話ししましたように、パラメトリック蛍光と呼ばれる過程では、信号光 ω_2 を外から入れない場合でも ω_2 と ω_3 が発生します。 ω_2 の光に対してのみ高い反射率を持つ鏡を使って作った共振器の中に非線形媒質を置いて、強いポンプ光を入射させた場合、媒質の中で起こるパラメトリック蛍光によって発生した ω_2 だけが、共振器の中で増幅を受けて強く成長し、共振器の外へ取り出すことができます。これが「光パラメトリック発振」です。共振器を作っている鏡の特性を ω_2 と ω_3 の両方に高い反射率を持つようにすれば、二種類の波長の光を取り出すことも可能です。ここで疑問が生じるはずですが、 ω_1 の光が $\omega_1 = \omega_2 +$

ω_3 にしたがって二つの光に分解されるのはわかるのですが、 ω_2 と ω_3 はどうやって決まるのでしょうか？ それは7.2節でお話した「位相整合条件」によって決まります。位相整合の詳しいおはなしは次章（4節）に出てきます。その値は、非線形光学結晶の中での光の方向や温度によって変化します。逆に言えば、結晶の方位や温度を制御することによって、得られる波長を変えることができるのです。すなわち、光パラメトリック発振器は、赤外からテラヘルツ波に至る広い長波長領域における波長可変光源となるのです。

図1.19に、光パラメトリック発振器を利用して5～12 μm の赤外光を発生させる方法を描いてあります。Nd：YAGレーザーの1.06 μm 光を二つに分けて、二つの非線形光学結晶に入れます。一つで1.6 μm の波長の光を発生させ、残る方で1.84～2.35 μm の波長可変光を作ります。この二つの光をAgGaS₂結晶に入れて差周波発生を行わせます。この結晶の温度を20 から160 の間で変えることによって、5 μm から12 μm のレーザー光を発生させています。この波長範囲において直接発振させるのは難しいのですが、光パラメトリック発振を利用すれば、広い波長範囲にわたって波長可変の光源を作ることができるのです。

8 三次非線形光学効果

次に、式(1.5)の中の $\chi^{(3)}$ によって現れる現象のいくつかを見てみましょう。

8.1 第三高調波発生

$\chi^{(3)}$ は $\chi^{(2)}$ の 2×10^7 分の一、 $\chi^{(1)}$ の 4×10^{14} 分の一程度の非常に小さい量ですが、レーザー光を集光した場合のように、非常に強い光の場合には観測可能な量になってきます。式(1.3)の電界を持つ光を非線形光学結晶に入れ

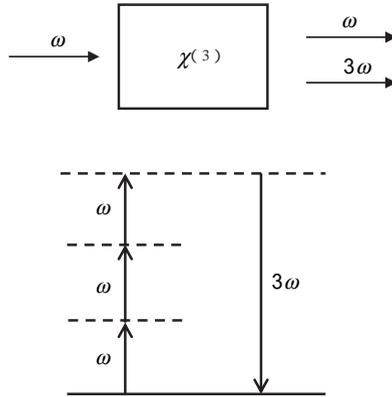


図1.20 第三高調波発生

た場合、 $\chi^{(3)}$ によって

$$\begin{aligned} P_{NL}^{(3)} &= \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \sin^3 \omega t \\ &= \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \left\{ \frac{3}{4} \sin \omega t - \frac{1}{4} \sin 3\omega t \right\} \end{aligned} \quad (1.11)$$

となり、 3ω と ω を含む項が現れます。前者を「第三高調波発生」と呼んでいます。図1.20にその様子を描いてあります。赤外光から紫外光を発生させる場合などに使われますが、効率は非常に低いことは仕方ありません。

8.2 強度依存屈折率

式(1.11)において、 3ω の項に加えて ω の項が現れています。 ω の項は、周波数 ω の光によって屈折率が変化することを意味しています。このような非線形性は

$$n = n_0 + n_2 I$$

と書くことができます。 n_0 は、光の強さに関係しない屈折率です。例えば、ガラスですと1.46程度の値ですが、波長によって異なる値を示します。普通はこの項だけが現れます。 I は光の強度です。光の強度が強くなると、その強度によって変化する成分が加わることを意味しています。 n_2 が屈折率の非線形性を表す項で、 $\chi^{(3)}$ に比例する量です。光は屈折率の高い方に集まる傾向を持っています。したがって、 $n_2 (> 0)$ の非線形媒質の中に、円形の断面を持ち、図1.21のような強度分布を持つ光を入れた場合を考えてみましょう。光の中心部が強いので、媒質の中では中心部に近い方が、円周部よりも高い屈折率を示します。その結果、非線形媒質中では光が円形の中央に集まることとなります。まるで、凸レンズを通った光が焦点に集光するのと同じです。

強度分布が一様でない強いレーザー光が厚さのある物質の中に入ると、非線形屈折率の影響によって、物質の内部に集光されてその光強度が極端に上がる結果、物質の破壊が起こることになります。レーザーが強くなればなるほど、このような影響が出やすくなりますので、物質が透明であっても、油断はできません。レーザー光の強度分布や物質の $\chi^{(3)}$ の大きさなどをあら

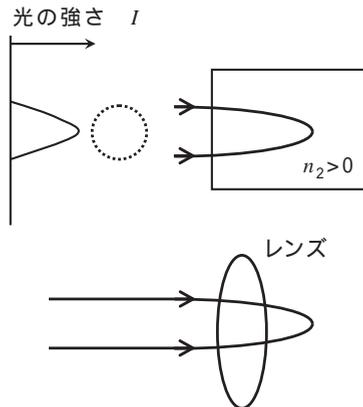


図1.21 自己集光

かじめ調べておく必要があります。なお、 $\chi^{(2)}$ は物質によってはゼロのものもありますが、 $\chi^{(3)}$ はあらゆる物質（気体，液体，固体を問わず）に存在することも、このような自己集光では注意が必要です。

8.3 四波混合

三次の非線形光学効果の例として、第三高調波発生と自己集光についてお話ししました。最後に、一般的な三次効果についてまとめておきましょう。ただし、他にも異なる現象があることはご注意ください。

二次の非線形光学効果では、物質中には常に三つの波が存在していました。この延長で考えると、三次効果では四つの波が存在していることになるでしょう。一般的に、

$$E = E_1 \sin \omega_1 t + E_2 \sin \omega_2 t + E_3 \sin \omega_3 t \quad (1.12)$$

と書ける光波が、 $\chi^{(3)}$ を持つ物質に入射した場合を考えましょう。 $\chi^{(3)}$ の項は E^3 を含んでいますので、式 (1.12) を三乗すると、

$$\{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}, \{3\omega_1, 3\omega_2, 3\omega_3\}, (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), (\omega_1 + \omega_2 - \omega_3), (\omega_1 - \omega_2 + \omega_3), (-\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), (2\omega_1 \pm \omega_2), (2\omega_1 \pm \omega_3), (2\omega_2 \pm \omega_3), (2\omega_2 \pm \omega_1), (2\omega_3 \pm \omega_1), (2\omega_3 \pm \omega_2)$$

の項が現れます。最初の三つは、強度に依存する屈折率に、次の三つは第三高調波発生に相当します。では、その次の二つの場合（下線部）について考えてみましょう。すなわち、三つの入力の一つの出力となる場合を図に描いてみましょう。図 1.22 の上は、 $(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ のケース、下は $(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)$ のケースを描いてあります。いずれの場合も、物質中には四つの波が共存していることになり、一般的には四波混合と呼ばれています。いずれのケースが実施起っているのかについては、位相整合条件によって決まること

は、他の場合と同様です。

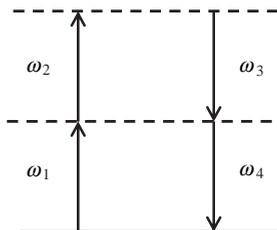
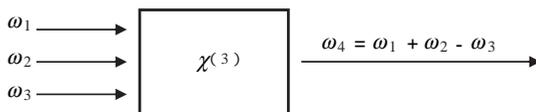
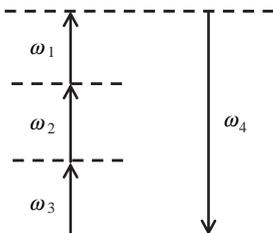
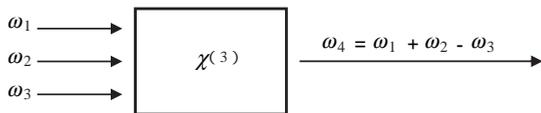


図 1.22 四波混合 (3入力波 + 1出力波) の二つのケース

9

おわりに

非線形光学効果をわかりやすくお話するのがこの本の目的です。ですが、時には数式を使わなくてはなりません。数学は、現象の理解を助けるために使われますので、いやがらずにおつきあい下さい。ここでは、三角関数が出てきました。数式を自分で検算してみる必要はありません。「そんなものか」とホンワリと理解するのも読みやすくなる手です。また、別の章を読み返す必要が無いように、重複する場合があります。その章だけを読んでも理解できるように心がけました。

本章は、二次と三次の非線形光学効果を定性的にお話ししました。非線形光学効果の現象と例を理解していただけたものと思っています。まだまだ異なる現象もありますが、一応ここらであらましのお話を終えることにしましょう。

参考文献

- 1) 黒澤宏「レーザー 基礎の基礎」(オプトロニクス社, 1999年)
- 2) P.A.Franken, A.E.Hill, C.W.Peters, and G.Weinreich, *Phys. Rev. Letteres*, 7(1961)118.
- 3) H.Kawai, H.Tokuhisa, M.Doi, S.Miwa, H.Matsuura, H.Kitano, and S.Owa; *Technical Digests of Conference on Lasers and Electro-Optics*, CTuT4,(Baltimore, June 2003).
- 4) S.Haidar, E.Niwa, K.Masumoto, and H.Ito; *Journal of Physics D*, Vol.36, pp.1071(2003).