第5章　非線形光学の基礎方程式

5. 1. 非線形波動方程式の導出

Maxwell 方程式から非線形光学の基本波動方程式を導出する。Maxwell-Ampere の式で光の電場を$\mathbf{E}$、磁場を$\mathbf{H}$、電気変位ベクトルを$\mathbf{D}$、電気分極を$\mathbf{P}$及び電流密度を$\mathbf{J}$とすると、

$$
\begin{aligned}
rot\mathbf{H} &= \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = \mathbf{J} + \frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}\right) \\
&= \sigma \mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon \mathbf{E}\right) + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t}
\end{aligned}
\tag{5.1}
$$

が成立する。ここで

$$
\begin{aligned}
&\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL}, \\
&\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}
\end{aligned}
\tag{5.2}
$$

を用いた。また Faraday の電磁誘導の法則より

$$
rot\mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \tag{5.3}
$$

が成立する。(5.3)の回転をとり(5.1)式を代入すると

$$
\begin{aligned}
rot\left(rot\mathbf{E}\right) &= -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t}\left(rot\mathbf{H}\right) \\
&= -\mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathbf{E} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}
\end{aligned}
\tag{5.4}
$$

ここで左辺は

$$rot\left(rot\mathbf{E}\right) = grad\left(div\mathbf{E}\right) - \nabla^2\mathbf{E}$$

$$= -\nabla^2\mathbf{E}$$

ただし媒質を伝播する光は横波と仮定すると

$$div\mathbf{E} = 0$$

が成立することを用いた(＊)。

(＊) これは一様な媒質では正しい。一様でない媒質の場合には一般的に $div\mathbf{E} = 0$ とはならない。 $div\mathbf{D} = 0$ が成立する。

これより

$$\boxed{\nabla^2\mathbf{E} = \mu_0\sigma\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} + \varepsilon\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0\frac{\partial^2\mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \qquad (5.5)}$$

が成立する。これは非線形波動方程式と呼ばれ、非線形光学の基礎方程式である。振動する電気双極子が電磁波の波源となるので、(5.5)式は右辺の非線形分極 $\mathbf{P}_{NL}$（の時間に関する 2 階微分）が媒質で新しい波を作り出し、その光波の電場 $\mathbf{E}$ が上の波動方程式に従って伝播する。

5. 2.　2 次の非線型光学現象（3 波結合方程式）

まず 2 次の非線形光学現象を考えよう。ただしここでは電気分極に関する非線形光学現象のみを考え、電気 4 重極子や磁気双極子による現象は考えない。また結合方程式を導く過程で、いくつかの基本的な近似を使用する。この仮定が実際の現象を解析する場合に有効かどうかを常に頭に置いておく必要がある。

異方性媒質中では、非線形分極 $\mathbf{P}_{NL}$ は光電場 $\mathbf{E}$ と次のような関係がある。

$$P_i^{(\omega_1)} = \varepsilon_0 d_{ijk} E_j^{(\omega_2)} E_k^{(\omega_3)} \tag{5.6}$$

ここで d は 2 次の非線形光学定数(SHG 定数)と呼ばれる 3 階の極性テンソルである。添字 i 、 j 、 k はテンソル主軸 x 、 y 、 z を 1、2、3 は波に付けた番号である。上式は j 方向に振動する角振動数 ω_1 の波と、 k 方向に振動する ω_2 の波が非線形的な相互作用の結果、i 方向に振動する ω_3 の角振動数をもつ非線形分極 $\mathbf{P}$ を作ることを意味する。

近似 1：平面波近似

媒質内を伝播する光は全て平面波であると仮定する。実際のレーザービームは平面波ではなくガウス型の強度分布をしているが、媒質全体をレーザービームが覆い、またレーザービームのくびれの位置に試料を置く場合にはこの仮定は良い近似となる。

近似 2：近軸光線近似（paraxial approximation）

電場 $\mathbf{E}$ の複素振幅 $\mathbf{A}$ は z のみの関数となる。これは、複数の波が媒質で相互作用するとき、その領域が z 軸の近傍にあるとする近似であり、一般的に成り立つ。2 波混合の場合を例にとって、図に示す。

近似 3：一様性媒質

光電場 $\mathbf{E}$ と波数ベクトルは直交する。すなわち

$$\mathbf{E} \cdot \mathbf{k} = 0$$

振動数が ω_1 、 ω_2 、 ω_3 の 3 つの平面波の電場は

$$\mathbf{E}_i^{(\omega_1)}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\left[\mathbf{A}_{1i}(z)\exp i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})\right] + c.c. \tag{5.7}$$

$$\mathbf{E}_j^{(\omega_2)}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\left[\mathbf{A}_{2j}(z)\exp i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})\right] + c.c. \tag{5.8}$$

$$\mathbf{E}_k^{(\omega_3)}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\left[\mathbf{A}_{3k}(z)\exp i(\omega_3 t - \mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r})\right] + c.c. \tag{5.9}$$

いま 2 と 3 の波により振動数が

$$\omega_1 = \omega_3 - \omega_2 \tag{5.10}$$

となるような分極波が作られるとすると、（5.6）より

$$\left[\mathbf{P}_{NL}^{(\omega_1)}(\mathbf{r},t)\right]_i = \frac{1}{2}\varepsilon_0 d_{ijk}\left\{\mathbf{A}_{3k}(z)\mathbf{A}_{2j}^{*}(z)\exp i\left[(\omega_3-\omega_2)t-(\mathbf{k}_3-\mathbf{k}_2)\cdot\mathbf{r}\right]+c.c.\right\} \tag{5.11}$$

この PNL が波源となって新しい波 1 が作られる。そこで波動方程式(5.5)よりまず左辺を計算する。ここで 3 つの波が伝播する平面を(x,z)平面とする。

$$\nabla^2\mathbf{E}_{1i}^{(\omega_1)} = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2}+\frac{\partial^2}{\partial z^2}\right)\mathbf{E}_{1i}^{(\omega_1)} \tag{5.12}$$

であるから空間微分を x、 z 座標について別々に計算し足し合わせる。 z 座標についでは

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2}\mathbf{E}_{1i}^{(\omega_1)} = -\frac{1}{2}\left\{2i\left(\frac{\partial}{\partial z}\mathbf{A}_{1i}(z)\mathbf{k}_{1z}\right)\right.$$

$$\left.+\mathbf{A}_{1i}(z)\mathbf{k}_{1z}^2-\frac{\partial^2}{\partial z^2}\mathbf{A}_{1i}(z)\exp i(\omega_1 t-\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r})+c.c.\right\} \tag{5.13}$$

一方、 x 座標については振幅 $\mathbf{A}$ は z のみの関数なので

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2}\mathbf{E}_{1i}^{(\omega_1)} = -\frac{1}{2}\left\{\mathbf{A}_{1i}(z)\mathbf{k}_{1x}^2\exp i(\omega_1 t-\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r})+c.c.\right\} \tag{5.14}$$

これより

$$\nabla^2\mathbf{E}_{1i}^{(\omega_1)} = -\frac{1}{2}\left\{2i\left(\frac{\partial}{\partial z}\mathbf{A}_{1i}(z)\mathbf{k}_{1z}\right)\right.$$

$$+\mathbf{A}_{1i}\left(z\right)\left(\mathbf{k}_{1x}^2+\mathbf{k}_{1z}^2\right)-\frac{\partial^2}{\partial z^2}\mathbf{A}_{1i}\left(z\right)\exp i\left(\omega_1 t-\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}\right)+c.c.\Big\} \tag{5.15}$$

を得る。

近似 4：微小振幅変動近似(Slow varying envelop approximation SVEA)

ここで媒質中を進行する光の振幅は、波長に比較してゆっくりと変化するという近似を用いる。この近似は極超短パルスのように、ひとつの波束のなかに数えることの出来るくらいの波数しか含まれていない波を取り扱うときには、適用出来ないので注意が必要である。この時

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2}\mathbf{A}\left(z\right) \ll \mathbf{k}\frac{\partial}{\partial z}\mathbf{A}\left(z\right) \tag{5.16}$$

が成立する。なぜなら両辺を積分して

$$\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial z} \ll \frac{\mathbf{A}}{\lambda}$$

これより

$$\frac{\Delta \mathbf{A}}{\mathbf{A}} \ll \frac{\Delta z}{\lambda}$$

このことは、振幅 $\mathbf{A}$ の変化が波長に比較して微小であることを意味している。従って(5.15)において $\mathbf{A}$ の z に関する 2 階微分の項を無視すると

$$\nabla^2\mathbf{E}_{1i}^{(\omega_1)}=-\frac{1}{2}\left\{\left[2i\frac{\partial}{\partial z}\mathbf{A}_{1i}\left(z\right)\mathbf{k}_{1z}+\mathbf{A}_{1i}\left(z\right)\left(\mathbf{k}_{1x}^2+\mathbf{k}_{1z}^2\right)\right]\right.$$
$$\left.\times\exp i\left(\omega_1 t-\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}\right)+c.c.\right\} \tag{5.17}$$

一方、(5.5)式の右辺は

$$\left[i\mu_0\sigma\omega_1 - \omega_1^2\mu_0\varepsilon\right]\frac{1}{2}\mathbf{A}_{1i}\left(z\right)\exp i\left(\omega_1 t - \mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}\right) + c.c.$$

$$+\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \tag{5.18}$$

ここで

$$\omega_1^2\mu_0\varepsilon = \left(\frac{\mathbf{k}_1 c}{n_1}\right)^2\mu_0\varepsilon = \mathbf{k}_1^2 = \left(\mathbf{k}_{1x}^2 + \mathbf{k}_{1z}^2\right)$$

かつ

$$\frac{\partial^2\mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} = -\frac{1}{2}\left(\omega_3 - \omega_2\right)^2\varepsilon_0 d_{ijk}\left\{\mathbf{A}_{3k}\left(z\right)\mathbf{A}_{2j}^*\left(z\right)\right.$$

$$\left.\times\exp i\left[\left(\omega_3-\omega_2\right)t - \left(\mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_2\right)\cdot\mathbf{r}\right] + c.c.\right\}$$

$$= -\frac{1}{2}\left(\omega_1\right)^2\varepsilon_0 d_{ijk}\left\{\mathbf{A}_{3k}\left(z\right)\mathbf{A}_{2j}^*\left(z\right)\right.$$

$$\left.\times\exp i\left[\omega_1 t - \left(\mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_2\right)\cdot\mathbf{r}\right] + c.c.\right\} \tag{5.19}$$

これより

$$i\mathbf{k}_1\left\{\frac{\partial\mathbf{A}_{1i}^{(\omega_1)}\left(z\right)}{\partial z}\right\}e^{-i\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}} = -\frac{1}{2}i\omega_1\sigma\mu_0\mathbf{A}_{1i}\left(z\right)e^{-i\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}}$$

$$+\left(\frac{1}{2}\right)\mu_0\omega_1^2\varepsilon_0 d_{ijk}\mathbf{A}_{3k}\left(z\right)\mathbf{A}_{2j}^*\left(z\right)e^{-i\left(\mathbf{k}_3-\mathbf{k}_2\right)\cdot\mathbf{r}} \tag{5.20}$$

ここで

$$i\omega_1\sigma\mu_0 = i\sigma\frac{c}{n_1}\mathbf{k}_1 = i\sigma\frac{\mu_0}{\sqrt{\varepsilon_1^{\mathbf{r}}\varepsilon_0\mu_0}}\mathbf{k}_1$$

$$= i\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_1}}\mathbf{k}_1$$

を用いると

$$\boxed{\frac{\partial \mathbf{A}_{1i}^{(\omega_1)}}{\partial z} = -\frac{1}{2}\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_1}}\mathbf{A}_{1i} - i\frac{1}{2}\omega_1\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_1}}\varepsilon_0 d_{ijk}\mathbf{A}_{3k}\mathbf{A}_{2j}^{*}e^{-i(\mathbf{k}_3-\mathbf{k}_2-\mathbf{k}_1)\cdot\mathbf{r}}} \qquad (5.21)$$

同様に、$\mathbf{E}_1(\omega_1)$と$\mathbf{E}_3(\omega_3)$は$\mathbf{P}_{NL}(\omega_2)$を作ることによって$\mathbf{E}_2(\omega_2)$を発生させるので

$$\boxed{\frac{\partial \mathbf{A}_{2i}^{(\omega_2)^*}}{\partial z} = -\frac{1}{2}\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_2}}\mathbf{A}_{2j}^{*} + i\frac{1}{2}\omega_2\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_2}}\varepsilon_0 d_{jik}\mathbf{A}_{1i}\mathbf{A}_{3k}^{*}e^{-i(\mathbf{k}_1+\mathbf{k}_2-\mathbf{k}_3)\cdot\mathbf{r}}} \qquad (5.22)$$

また$\mathbf{E}_1(\omega_1)$と$\mathbf{E}_2(\omega_2)$は$\mathbf{P}_{NL}(\omega_3)$を作ることによって$\mathbf{E}_3(\omega_3)$を発生させるので

$$\boxed{\frac{\partial \mathbf{A}_{3k}^{(\omega_3)}}{\partial z} = -\frac{1}{2}\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_3}}\mathbf{A}_{3k} - i\frac{1}{2}\omega_3\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_3}}\varepsilon_0 d_{kij}\mathbf{A}_{1i}\mathbf{A}_{2j}e^{-i(\mathbf{k}_1+\mathbf{k}_2-\mathbf{k}_3)\cdot\mathbf{r}}} \qquad (5.23)$$

この 3 式を 3 波結合方程式と呼び､2 次の非線形光学現象を記述する最も基本的な方程式である。通常 2 次の非線形光学現象を議論する場合には、この結合方程式から出発することが多い。

この結合方程式で、右辺の第 1 項は光の吸収を表し、第 2 項は媒質での光波間の相互作用を表す。

第 6 章　光第 2 高調波発生（second harmonic generation, SHG）と位相整合

6. 1 第 2 高調波発生

実用上で重要な第 2 高調波発生の場合を考えよう。この時振動数が等しい 2 つの波$(\omega_1 = \omega_2 = \omega)$が同一方向に伝播して、$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 = 2\omega$の 3 番目の波を作る。振動数$\omega$の波を基本波、振動数が 2 倍の波を第 2 高調波と呼ぶ。
今、簡単のために次の 3 つの仮定をする。

仮定 1：吸収を無視する

すなわち結合方程式(5.21)～(5.23)式の第 1 項は無視する。ω、2ωの領域で結晶が透明な場合にはこの近似はよい近似である。

仮定 2：基本波の強度は大きく、そのエネルギーが2ωの波に変換されるための減衰は無視する

後で述べる位相整合条件が満たされていて、ωから2ωへの変換効率が大きい場合にはこの近似は適用できない。位相整合条件が満たされない場合には、変換効率は非常に小さいので、この近似はよい近似である。また位相整合条件が満たされる場合でも、有効相互作用が短いうちはこの近似は使用できる。

仮定 3：基本波と第 2 高調波は同一方向（ここではz方向とする）に伝播する（colinear）

実用的にはほとんどの場合このような条件のもとで使用される。

このとき 3 波結合方程式(5.21)～(5.23)式において、(5.21)と(5.22)式は基本波の減衰がないので意味を持たない。(5.23)式のみを考えればよい。
第 2 高調波の基本式は従って

$$\frac{\partial \mathbf{A}_{3k}^{(\omega_3)}}{\partial z} = -\frac{1}{2} i\omega_3 \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_3}} \varepsilon_0 d_{ijk} \mathbf{A}_{1i}^{(\omega_1)} \mathbf{A}_{1j}^{(\omega_1)} \exp\left(i\Delta \mathbf{kr}\right) \tag{6.1}$$

となる。ここでωは基本波の角振動数である。ここで$\Delta\mathbf{k}=\mathbf{k}_3-2\mathbf{k}_1$である。この式で$\mathbf{A}_1$は一定であるから、すぐ積分できて

$$\mathbf{A}_{3k}\left(L\right)=-i\omega\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_3}}\varepsilon_0 d_{kij}\mathbf{A}_{1i}\mathbf{A}_{1j}\int_0^L e^{i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}dz$$

$$=-i\omega\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_3}}\varepsilon_0 d_{kij}\mathbf{A}_{1i}\mathbf{A}_{1j}\frac{e^{i\Delta\mathbf{k}L}-1}{i\Delta\mathbf{k}} \tag{6.2}$$

ここで結晶の厚さ（光路長）Lにつき積分を行った。(6.2)式より

$$\left|\mathbf{A}_{3k}\left(L\right)\right|^2=\omega^2\frac{\varepsilon_0\mu_0}{n_3^2}\left(d_{kij}\right)^2\left|\mathbf{A}_{1i}\right|^2\left|\mathbf{A}_{1j}\right|^2\frac{2-\left(e^{i\Delta\mathbf{k}L}+e^{-i\Delta\mathbf{k}L}\right)}{\left(\Delta\mathbf{k}\right)^2}$$

$$=\omega^2\frac{\varepsilon_0\mu_0}{n_3^2}\left(d_{kij}\right)^2\left|\mathbf{A}_{1i}\right|^2\left|\mathbf{A}_{1j}\right|^2\frac{2-2\cos\Delta\mathbf{k}L}{\left(\Delta\mathbf{k}\right)^2}$$

$$=\omega^2\frac{\varepsilon_0\mu_0}{n_3^2}\left(d_{kij}\right)^2\left|\mathbf{A}_{1i}\right|^2\left|\mathbf{A}_{1j}\right|^2\frac{2-2\left\{1-2\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)\right\}}{\left(\Delta\mathbf{k}\right)^2}$$

$$=\omega^2\frac{\varepsilon_0\mu_0}{n_3^2}\left(d_{kij}\right)^2\left|\mathbf{A}_{1i}\right|^2\left|\mathbf{A}_{1j}\right|^2\frac{4\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\Delta\mathbf{k}\right)^2}$$

$$=\omega^2\frac{\varepsilon_0\mu_0}{n_3^2}\left(d_{kij}\right)^2\left|\mathbf{A}_{1i}\right|^2\left|\mathbf{A}_{1j}\right|^2 L^2\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2} \tag{6.3}$$

となる。

これより第 2 高調波のポインティングエネルギー$\mathbf{S}_3$は

$$\mathbf{S}_3 = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\varepsilon_3}{\mu_0}}\left|\mathbf{A}_{3k}\left(L\right)\right|^2$$

$$= \frac{1}{2}\omega^2\left(\varepsilon_0\right)^{\frac{3}{2}}\left(\mu_0\right)^{\frac{1}{2}}\frac{1}{n_3^{(2\omega)}}\left(d_{kij}\right)^2\left|\mathbf{A}_{1i}\right|^2\left|\mathbf{A}_{1j}\right|^2 L^2\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2}$$

$$= \frac{1}{2}\omega^2\left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}\right)^{\frac{1}{2}}\frac{1}{n_3^{(2\omega)}}\left(\varepsilon_0 d_{kij}\right)^2\left|\mathbf{A}_{1i}\right|^2\left|\mathbf{A}_{1j}\right|^2 L^2\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2} \tag{6.4}$$

となる。尚

$$\mathbf{S}_p = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\varepsilon_p}{\mu_0}}\left|\mathbf{A}_p\right|^2 = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}n_p^{(\omega)}\left|\mathbf{A}_p\right|^2 \tag{6.5}$$

であるから、(6.4)式は次式となる。

$$\boxed{\mathbf{S}_3 = 2\omega^2\left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}\right)^{\frac{3}{2}}\frac{1}{n_3^{(2\omega)}\left\{n_1^{(\omega)}\right\}^2}\left(\varepsilon_0 d_{kij}\right)^2\mathbf{S}_{1i}\mathbf{S}_{1j}L^2\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2}} \tag{6.6}$$

注意すべきこと

(1) この式で sin の項は、干渉項である。これは(図 6.1)のように振動数ωの基本波が結晶を伝播すると、各場所で振動数 2ωの分極波を作り、これが波源となって振動数 2ωの第 2 高調波が伝播する。しかしωの波と 2ωの波とは位相速度が異なるので、結晶の各箇所で作られた第 2 高調波の位相は異なる。従ってそれを足し合わせると、sin で表されるような干渉項が出てくるのである。

もし波数のミスフィット$\Delta\mathbf{k}$が 0 であると、各箇所で作られる第 2 高調波の位相は全て同一となり、足し合わされて結晶の長さの二乗に比例した大きな第 2 高調波は生じる。これが“ 位相整合 ”と呼ばれる実用上重要な技術であ

る。これについては後で詳しく述べる。

(2) 第 2 高調波強度を大きくするためには、d 定数が大きいことが必要である。d を 1 桁上げれば、入射強度を 1 桁下げることが可能。これは半導体レーザーの波長を変換するときに非常に魅力的である。この d をいかに大きくするかが、物質科学の立場から盛んに研究されている。これについても後で詳しく述べる。

(3) 第 2 高調波強度は入射基本波の強度の二乗に比例する。これは SHG が 2 次の非線形効果であることから、当然の帰結である。

(4) (5.40)式から SHG の変換効率ηを計算すると

$$\eta=\frac{\mathbf{S}_3}{\mathbf{S}_1}=2\omega^2\left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}\right)^{\frac{3}{2}}\frac{1}{n_3^{(2\omega)}\left\{n_1^{(\omega)}\right\}^2}\left(\varepsilon_0 d_{kij}\right)^2\frac{\mathbf{S}_{1i}\mathbf{S}_{1j}}{\mathbf{S}_1}L^2\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2}$$

$$=2\omega^2\left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}\right)^{\frac{3}{2}}\frac{1}{n_3^{(2\omega)}\left\{n_1^{(\omega)}\right\}^2}\left(\varepsilon_0 d_{kij}\right)^2\mathbf{S}_1\cos\alpha_i\sin\alpha_j L^2\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2} \tag{6.7}$$

この式からわかるように変換効率ηは入射強度に比例する。従って、強度の強いレーザー光を使用すると変換効率は大きくなる。事実固体パルスレーザーのような強度の強いレーザー光を用いると、ηは 30%から、時には 50%近く達成される。
でなくてはならない。

尚、上式から入射基本波を非常に大きくすると、変換効率が 100%を超えてしまい、エネルギー保存則に反することになる。この時には、入射基本波の強度が一定であるという仮定が成立しなくなるので、上の議論は成立しなくなる。この時は吸収が無視できる場合の結合方程式(5.23)式を厳密に解かなければならない。

6. 2　位相整合の原理

(1) 位相整合の重要性

　前節(5.40)式で見たように、変換効率の高い第 2 高調波を発生させるには、波数に関するミスマッチ $\Delta\mathbf{k}$ を 0 にすることが本質的に重要である。この条件を位相整合条件（phase matching）という。

$$\mathbf{S}_3 = 2\omega^2\left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}\right)^{\frac{3}{2}}\frac{1}{n_3^{(2\omega)}\left\{n_1^{(\omega)}\right\}^2}\left(\varepsilon_0 d_{kij}\right)^2\mathbf{S}_{1i}\mathbf{S}_{1j}L^2\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2}$$

このとき(6.6)式の干渉項

$$\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)^2}$$

は 1 となり、最大となる。これは結晶の各部分で発生する第 2 高調波は全て同一位相となり、その振幅が足し合わされる条件である。この時

$$\begin{aligned}\Delta\mathbf{k} &= \mathbf{k}_3^{(2\omega)} - 2\mathbf{k}_1^{(\omega)} \\ &= \left(\frac{2\omega}{c}\right) - 2\left(\frac{\omega}{c}\right)n^{(\omega)} \\ &= \left(\frac{2\omega}{c}\right)\left\{n^{(2\omega)} - n^{(\omega)}\right\} = 0 \end{aligned} \tag{6.8}$$

これより基本波と第 2 高調波が同一方向に伝播する第 2 高調波発生の位相整合条件は

$$n^{(2\omega)} = n^{(\omega)} \tag{6.9}$$

となる。この条件は通常の結晶では満たすことは出来ない。すなわち屈折率には程度の大小はあるが、必ず波長に対する分散があるからである。これをどのように実現するかは、変換効率の大きな SHG 素子を作成する上で最も重要な技術であり、色々な方法が提案されている。これについては後で述べる。

位相整合条件が満たされない時、(6.6)式の干渉項は

$$\frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L\right)}{\left(\Delta\mathbf{k}\right)^2} \tag{6.10}$$

となるので、光路長 L を変化させると SHG 強度は図のように振動して変化する。

（図 6.2）位相整合条件を満たさない場合の SHG 強度（その 1）

この周期的な変動の山と谷の距離に対応する光路を " 干渉距離（コヒーレンス長）" という。これは次のようにして位相整合条件の目安となる。山と谷では干渉項の中の sin の位相が $\frac{\pi}{2}$ 異なるので

$$\frac{1}{2}\Delta\mathbf{k}L_c = \frac{\pi}{2}$$

$$L_c = \frac{\pi}{\Delta\mathbf{k}} = \frac{\pi}{\frac{2\omega}{c}\left\{n^{(2\omega)} - n^{(\omega)}\right\}}$$

$$= \frac{\lambda_0}{4\left\{n^{(2\omega)} - n^{(\omega)}\right\}} \tag{6.11}$$

となる。ここで λ_0 は真空中の基本波の波長である。従って干渉長 L_c は位相整合条件に近づくにつれ大きくなり、完全に満たされた時無限大となる。

位相整合条件が満たされない時の SHG 強度は、干渉項が 1 の場合、$\Delta\mathbf{k}$ の逆数の二乗に比例する。ここで $\frac{1}{\Delta\mathbf{k}}$ は L_c に比例するので、SHG 強度は干渉距離の二乗に比例することになる。SHG 強度において、干渉項を 1 にすることがいかに大切であるかを、以下に見てみよう。図に SHG 強度を $\Delta\mathbf{k}$ の関数で表す。

（図 6.3）位相整合条件を満たさない場合の SHG 強度（その 2）

SHG 強度は $\Delta\mathbf{k}$ に二乗に逆数で変化するので、振動項の振幅は急速に減少していく。結晶の厚さを 1cm とし、位相整合条件が満たされた時の強度に比較すると、干渉距離 L_c が 1570 ミクロンの時、強度は 100 分の 1 になる。干渉距離 1500 ミクロンは、屈折率の分散

$$\delta n = n^{(2\omega)} - n^{(\omega)} = 1.7\times10^{-4}$$

に対応し、現実の結晶では存在しない。更に干渉距離が 157 ミクロン（屈折率分散 1.7×10^{-3} ）では 1 万分の 1 となる。また干渉距離が最も現実的な 15.7 ミクロン（屈折率分散 1.7×10^{-2} ）の時強度は 10^{-6} すなわち 100 万分の 1 となる。

現実の結晶では屈折率の分散は

	KDP		$LiNbO_3$	
$\lambda(\mu m)$	n_0	n_e	n_0	n_e
1.06	1.4938	1.4599	4.2340	4.1554
.532	1.5123	1.4705	4.3251	4.2330
δn	0.0185	0.0106	0.0911	0.0776

となるので、通常の方法では位相整合は実現出来ないし、また SHG 強度の非常に低いことがわかる。

(2) 干渉距離 L_c の実験による決定方法

光路長 L を変化させて、SH 波の強度を測定する。この為には、一様な厚さの結晶を入射面内の軸のまわりに回転させる方法、及び結晶の入射面にテーパをつけ結晶を入射ビームに垂直な方向に移動させる方法とがある。図 6.4 に測定例を示す。

（図 6.4）コヒーレンス長の測定例

(3) 位相整合の方法

以上見てきたように、位相整合$\delta \mathbf{k}=0$を実現するには工夫が必要であることがわかる。

結晶の複屈折を利用した角度位相整合法

結晶を伝播する光は、進行方向に互いに 90 度方向に振動する 2 つの波に分かれて進行する。この 2 つの波の屈折率は異なる。これを複屈折とよぶ。2 つの光の屈折率の大きさは結晶中の光電場の振動方向に依存する。

今簡単のために、正方晶系、六方晶系、三方晶系に属する 1 軸性結晶で考えよう。ここでテンソル主軸の方向をx、y、zとすると、屈折率の異方性を表す屈折率曲面は

$$\frac{1}{n_0^2}\left(x^2+y^2\right)+\frac{1}{n_e^2}z^2=1 \tag{6.12}$$

で表される。ここでn_0は正常光の屈折率、n_eは異常光に対する屈折率である。

また$n_0<n_e$の時、光学的に正結晶、$n_0>n_e$の時光学的に負結晶という。先程示した KDP も LN の光学的に負の結晶である。

今結晶中を進む光の波面の方向（$\mathbf{k}$ベクトルの方向）をz方向から次第にx方向に変化させてみよう。この時切り口の楕円で、$\mathbf{k}$とzのなす面に垂直な軸は常に同じ長さとなる。一方面内の軸は$\mathbf{k}$方向に依存してn_0からn_eに変化する。この事は、一軸性結晶では正常光の屈折率は光の進行方向に依存しないこと、一方異常光の屈折率は$\mathbf{k}$の方向に依存してn_0とn_eの間の値をとることがわかる。

簡単な計算から、1 軸性の異常光の屈折率は、$\mathbf{k}$の方向がz軸からθの角度のとき

$$n_e(\theta)=\frac{1}{\sqrt{\left(\frac{\cos\theta}{n_0}\right)^2+\left(\frac{\sin\theta}{n_e}\right)^2}} \tag{6.13}$$

となる。この複屈折現象と屈折率の分散関係を使用すると、位相整合条件

$$n^{(2\omega)} = n^{(\omega)}$$

が実現できる。

まず光学的に負の結晶$\left(n_0 > n_e\right)$の場合を考えよう。この時結晶の屈折率の分散は（図 6.5）のように表される。

（図 6.5）一軸性結晶の屈折率分散

従って、基本波として**k** と z 軸のなす面に垂直に振動する電場を持つ正常光を用い、第 2 高調波として**k** と z 軸のつくる面内を振動する電場を持つ異常光を用い、**k** の方向を図のように適当に選べば、位相整合条件が実現できる。これは(6.28)式を用いれば

$$n_e^{(2\omega)}\left(\theta\right) = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{\cos\theta}{n_0^{(2\omega)}}\right)^2 + \left(\frac{\sin\theta}{n_e^{(2\omega)}}\right)^2}} = n_0^{(\omega)} \tag{6.14}$$

であり、これを満たす角度（位相整合角）をθ_0とすると、θ_0は

$$\sin^2\theta_0 = \frac{\left(n_0^{\omega}\right)^{-2} - \left(n_0^{2\omega}\right)^{-2}}{\left(n_e^{2\omega}\right)^{-2}\left(n_e^{2\omega}\right)^{-2}} \tag{6.15}$$

となる。正結晶の場合には図に示すように、今度は異常光を基本波として正常光を第 2 高調波とればよい。

今示した例は、基本波と第 2 高調波を$\left(2\omega, \omega, \omega\right)$と並べると、$\left(e, 0, 0\right)$あるいは$\left(0, e, e\right)$で書き表される。このように基本波が正常光成分のみ、あるいは異常光成分のみを用いている位相整合条件を「第一種の位相整合（タイプⅠ）」とよぶ。これに対し、基本波が 2 つの直交する成分eと 0 からなる場合（例えば基本波の

偏光方向が 1 軸性結晶の $x\,z$ 面内にある場合)、これを第二種（タイプII）の位相整合とよぶ。

この時は、負結晶の場合

$$\mathbf{k}_1^{(\omega)} + \mathbf{k}_1^{(\omega)} = \mathbf{k}_3^{(2\omega)}$$

$$n_0^{(\omega)} + n_0^{(\omega)} = 2n_e^{(2\omega)}$$

$$n_e^{(2\omega)} = \frac{1}{2}\left(n_0^{(\omega)} + n_e^{(\omega)}\right) \tag{6.16}$$

となる。