



講座 非線形光学結晶とそのプラズマ研究への応用

1.2 非線形光学結晶による高調波変換の基礎

吉村 政志, 森 勇介

大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻

(原稿受付: 2009年3月27日)

レーザーの波長域を深紫外や中赤外領域などに広げる方法として、非線形光学効果を利用した波長変換技術が知られている。波長変換の基礎原理を理解するために、第2高調波発生(SHG: second-harmonic generation)を中心に非線形分極の起源や位相整合について解説する。

Keywords:

nonlinear optical crystal, frequency conversion, birefringence, second-harmonic generation, phase matching, quasi-phase matching

1.2.1 はじめに

レーザーの波長域を深紫外や中赤外領域などに広げる方法として、非線形光学効果を利用した波長変換(frequency conversion)技術が知られている。特に、赤外固体レーザーと非線形光学結晶(nonlinear optical crystal)を用いた全固体紫外光源は、従来のガスレーザーに比べてガス交換が不要なため長寿命化、低コスト化が実現するだけでなく、装置サイズも小型化し、高繰り返しパルスで動作が可能で、ビーム品質が優れているといった利点を備えている。高繰り返しパルス動作は多層基板などの微細孔加工光源、半導体リソグラフィ用光学系・基板・マスクなどの検査光源に適しており、波長変換方式の光源に期待されるところが大きい。また、擬位相整合(QPM: quasi-phase matching)素子を利用した波長変換方式の緑色光源は、開発が遅れているInGaN系緑色半導体レーザーに先行し、レーザーディスプレイ、プロジェクタなどへ応用され始めている。本章では波長変換の基礎原理を理解するために、最初に屈折率分散、複屈折などを述べ、第2高調波発生(SHG: second-harmonic generation)を中心に非線形分極の起源、屈折率面、位相整合(phase matching)について解説する。さらに、和周波発生(SFG: sum-frequency generation)を使った高調波発生の概要を説明し、非線形光学結晶に求められる光学特性についても述べる。

1.2.2 波長変換の基礎

屈折率

近赤外から紫外領域の光は、光学媒質(誘電体)中で主に構成原子の外殻電子に対して電子分極を誘起する。この誘起された振動双極子が放出する輻射波と入射光の「位相を考慮した総和」が、結晶中を伝搬する光となる。真空中の光波速度を媒質中の光波速度で除したものが屈折率であ

1.2 Basis of Harmonic Generation in Nonlinear Optical Crystal

YOSHIMURA Masashi and MORI Yusuke

り、周波数が高くなる(波長が短くなる)と増大し、共鳴周波数(吸収端波長)に向かって発散する。波長変換を考える上で、この屈折率の波長依存性(屈折率分散、近似式はセルマイヤー方程式と呼ばれる)が重要となる。異方性結晶では同一方向の入射光に対しても偏光方向によって屈折率が異なっており、これを複屈折(birefringence)と呼ぶ。光学主軸 x , y , z の偏光方向に対する屈折率(主屈折率 n_x , n_y , n_z)が3つ異なる結晶を二軸性結晶、2つが異なる場合を一軸性結晶と呼ぶ。慣習的に $n_x < n_y < n_z$ となるように光学軸が取られる。複屈折を示さない入射方向(光軸)が二軸性結晶では xz 面内に2つ、一軸性結晶では z 軸方位に1つあり、名称の由来となっている。構造の対称性が比較的高い、正方晶系や三方晶系の結晶は一軸性結晶となる。一軸性結晶の場合、特に入射方位によって変化しない偏光成分(常光)の屈折率 $n_x = n_y$ を n_o (常屈折率)、極座標表記の入射角 θ に依存して変化する偏光成分(異常光)の屈折率を $n(\theta)$, n_z を n_e (異常屈折率)と表記する。結晶の屈折率の特性(吸収端波長, 分散, 複屈折)によって後述の位相整合条件が決まり、結晶がどのような波長変換に利用できるかわかる。異方性を理解するために屈折率面や屈折率楕円体が用いられるが、これらは位相整合のところで説明する。

非線形光学効果

中心対称性のない結晶(非線形光学結晶)中で誘起される「非対称に変位する電子分極波」には、印加光電界(基本波)と同一角周波数 ω の成分に加え、2倍角周波数(第2高調波) 2ω , および直流成分が含まれることがフーリエ解析からわかる。レーザーのような高強度電場の光を入射すると光電界強度の2乗に比例してこの第2高調波成分が発生し、さらに位相整合を満たすことで成分が減衰しない

author's e-mail: yoshi@eei.eng.osaka-u.ac.jp

で出力される．第2高調波の分極電界成分と入射電界は

$$P^{(2\omega)} = d^{(2\omega)} E^{(\omega)} E^{(\omega)} \quad (1)$$

の関係で表され，誘電分極の高次成分であることから2次の非線形光学効果と呼ばれている．波長変換のSHG, SFGはこの2次の非線形光学効果を用いて行われる．分極の大きさは係数の非線形光学定数 d に依存しており，非対称構造で，分極率の大きな原子団を持つ場合に値が大きくなる．各非線形光学結晶において， d は入射方位・偏光方向 (θ, φ) に依存するテンソル量であるが，これらの方位依存性を考慮したスカラー量，実効非線形光学定数 $d_{\text{eff}}(\theta, \varphi)$ が一般に用いられる．結晶の屈折率分散からある波長変換の位相整合方位および d_{eff} が決まる．ここで十分な大きさの d_{eff} が得られるかどうか，求められる波長変換に応用できるかどうかの鍵になる．

位相整合（第2高調波発生）

一軸性結晶において，形式上 $n_o > n_e$ の場合を負，逆を正の一軸性結晶と呼ぶ．波面伝搬方向を原点からとったベクトル $\mathbf{k}$ で表し，2つの直交する偏光方向の屈折率を原点からの距離で表示した二重曲面，屈折率面（負の一軸性結晶， xz 断面）は図1のようになる． n_o は球面， $n(\theta)$ は回転楕円面になり，それぞれ実線と破線で表現している．ベクトル $\mathbf{k}$ に垂直で紙面垂直方向に振動する偏光（常光）に対応する屈折率が n_o ，紙面内方向に振動する異常光の屈折率が $n(\theta)$ ($\theta = 90^\circ$ の時に n_e) となる．図1は角周波数 ω に対する屈折率面であり，より高周波になると屈折率面全体が大きくなる．十分に大きな複屈折 $\Delta n = n_o - n_e$ を持つ非線形光学結晶では，角周波数 ω とその第2高調波 2ω の屈折率面が図2のような関係になる場合がある．角度 θ_{pm} において， ω の常光と 2ω の異常光との屈折率が一致することがわかる．この角度 θ_{pm} に常光偏光で基本波 ω を入射すると，結晶内で生じた異常光成分の第2高調波 2ω は ω 光と同一速度で媒質中を伝搬する．この結果，結晶中で発生する 2ω

光の位相はすべて揃い，増幅を続けながら伝搬する．他の角度では 2ω 信号は増減を周期的に繰り返し，検出できない出力レベルとなる．この

$$n^{2\omega}(\theta) = n_o^\omega \quad (2)$$

を，第2高調波発生（SHG）のタイプ1位相整合条件と呼ぶ．また，

$$n^{2\omega}(\theta) = \frac{n_o^\omega + n^\omega(\theta)}{2} \quad (3)$$

となる条件でも 2ω 光は増幅される．これをタイプ2位相整合と呼ぶ． ω 光の波長が短くなるにつれ，より吸収端に近い 2ω の屈折率面が大きくなるため，角度 θ_{pm} は 90° に近づく．複屈折は x 軸方位が最大になるため，角度 90° の位相整合条件が短波長側の限界波長となる．より短い波長の光を発生させるには，吸収端波長が短く，複屈折が大きい結晶であることが望まれる．ここまでは，一般的な教科書でも述べられており，興味のある方は参考いただきたい[1-3]．

位相整合（和周波発生）

実際の高調波発生では第3高調波（THG: third-harmonic generation）や様々なSFGが使われているが，これらの位相整合条件について記述されている教科書は見当たらない．そこで，本章ではもう少し踏み込んだ説明を行いたい．式(1)の2次の非線形光学効果は，角周波数 ω の入射電界の2乗に比例して発生している．波長の異なる2つの入射光電界の積から，第3の光が生じる場合も同様に考えることができ，この場合を和周波発生（SFG）と呼ぶ．波長 λ_1, λ_2 の入射光のSFGによって， λ_3 の光が得られると考える．光のエネルギー保存則から3つの波長の関係は，

$$\frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \quad (4)$$

となる．各波長の屈折率を n_1, n_2, n_3 で表すと，波数

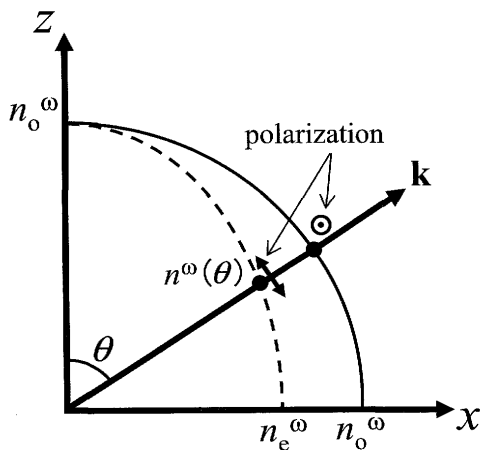


図1 負の一軸性結晶の屈折率曲面（角周波数 ω ， xz 断面）．波面伝搬ベクトル $\mathbf{k}$ に垂直で紙面垂直方向に振動する常光偏光に対応する屈折率（球面）を実線で，紙面内方向に振動する異常光偏光の屈折率（回転楕円面）を破線で表現している．

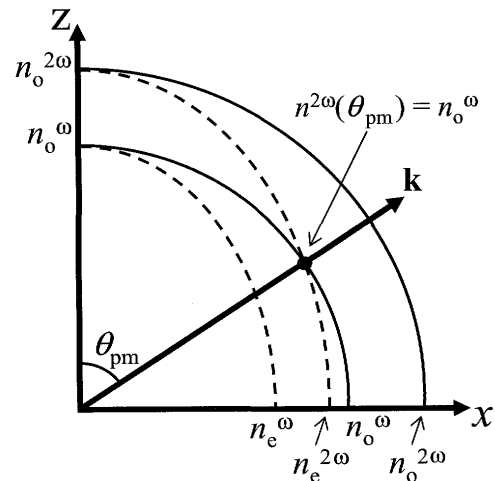


図2 負の一軸性結晶の第2高調波発生（タイプ1）の位相整合時の屈折率の関係．位相整合角 θ_{pm} の時に $n^{2\omega}(\theta) = n_o^\omega$ となる．

$k = 2\pi n/\lambda$ を用いて光の運動量保存則から

$$\frac{n_3}{\lambda_3} = \frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} \quad (5)$$

なる関係が導かれる。これが和周波発生における位相整合の関係式である。入射光 λ_1, λ_2 の偏光が平行な場合をタイプ1、直交する場合をタイプ2と呼ぶ。上で述べた SHG の条件は、 $2\lambda_3 = \lambda_1 = \lambda_2$ の SFG と考えることができる。SFG は組み合わせる波長によって SHG 限界波長よりも短波長の光を発生させることができる。例として、ホウ酸系非線形光学結晶 CsLiB₆O₁₀ (CLBO) [4] の最短 SHG 波長は 237 nm であるが、SFG によって Nd:YAG レーザーの基本波 ω (1064 nm) の第 5 高調波発生 ($\omega + 4\omega = 5\omega$) から 213 nm が得られ、Er 添加ファイバ増幅器の 1547 nm 光を基本波として 8 倍高調波発生 ($\omega + 7\omega = 8\omega$) によって 193 nm 光を得ることができる。 $\omega + 2\omega = 3\omega$ の SFG 出力は、基本波から見て 3 倍高調波となるため慣習的に THG と呼ばれている。THG の場合の位相整合条件は式(5)から

$$3n^{3\omega} = 2n^{2\omega} + n^{\omega} \quad (6)$$

となる。第 4 高調波発生 (4 HG: fourth-harmonic generation) は、基本波のレーザーに対して SHG を 2 段階行った場合を指す。

以上のように、屈折率の異方性と分散を理解し、エネルギー保存則と運動量保存則を使うことで、SHG, SFG の位相整合条件が求まる。差周波発生 (DFG: difference-frequency generation) は式(4), (5) の右辺が減算の場合である。波長の近い 2 つの入射光から中赤外光、テラヘルツ電磁波を発生することができる。以上のことから、波長変換応用を考える場合、「1) ある所望の波長変換に対し、候補材料の非線形光学結晶 (一軸性結晶) の屈折率から位相整合角 θ_{pm} を導く。2) 実効非線形光学定数 $d_{\text{eff}}(\theta_{\text{pm}}, \varphi)$ が最大になる φ を選んだ時に、その値が十分に大きいか検討する。」といった手順になる。例えば、負の一軸性結晶である CLBO は d_{eff} が

$$d_{\text{eff}}(\text{type1}, \theta, \varphi) = d_{36} \sin \theta \sin 2\varphi \quad (7)$$

という依存性を持つため、 θ が大きくなる短波長発生において有望な結晶とわかる。 φ は最大値となる 45° とする。CLBO と同じ結晶点群に属する KH₂PO₄ (KDP) は d_{eff} の方位依存性が同じであり、 d_{36} 値が異なる。結晶によっては最短波長に近づくにつれて、 d_{eff} がゼロになる場合もある。非線形光学結晶のデータ、簡単な理論は文献[5]にまとめられている。また、AS-Photonics 社の Dr. Arlee Smith よりフリーソフトの SNLO が開発されており、非線形光学結晶のデータ、位相整合角の計算等ができるようになっている [6]。

第 2 高調波発生

SHG (タイプ 1) を例に高変換効率を得る諸条件について考察する。変換効率は非線形分極項を含んだマクスウェル方程式から得られる。ここで、基本波の角周波数を ω 、

位相整合時の屈折率を n 、素子長を l 、実効非線形光学定数を d_{eff} 、ビーム断面積を A 、基本波の強度 (パワー) を P_ω 、 $\Delta k = k^{2\omega} - 2k^\omega$ とし、基本波光の減衰を無視できると仮定すると、変換効率 $\eta_{\text{SHG-1}}$ は

$$\eta_{\text{SHG-1}} = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega^2 d_{\text{eff}}^2 l^2}{n^3} \left(\frac{\sin(\Delta k l / 2)}{\Delta k l / 2} \right)^2 \frac{P_\omega}{A} \quad (8)$$

と得られる。 ϵ_0 は真空の誘電率、 c は光の速度である。式中の $(\sin(\Delta k l / 2) / (\Delta k l / 2))^2$ は sinc 関数と呼ばれる関数で、 $\Delta k = 0$ の時に最大値 1 を持つ。この $\Delta k = 0$ を屈折率の関係で示したものが式(2)の位相整合条件となる。高い変換効率を得るためには、 d_{eff} が大きい結晶を用い、素子長 l を長くし、ビーム強度 P_ω/A を高くすることが考えられる。一方、現実には ω 光と 2ω 光のエネルギー伝搬方向に角度ずれ (ウォークオフ角 ρ) が存在し、さらに波長変換に伴う ω 光強度の減衰も生じるため、素子長に対して l^2 の関係で変換効率が上昇しないことが多い。また、ビーム強度を高めるためにレーザー光を集光すると素子長方向で A が一定でなくなることから、 A, l, ρ との関係で最適な集光条件が存在することが知られている [7]。また、位相整合条件は、位相整合角からの角度ずれ、温度変化、波長変化に対して $\Delta k \neq 0$ となる。sinc 関数が最大値の半分の 0.5 になる角度ずれ幅を許容幅と呼ぶ。同様に、温度許容幅、波長許容幅がある。広い許容幅の波長変換素子は、光学調整が簡単で出力も安定するため実際の応用には好ましい。また、ウォークオフ角が小さい場合、長い素子長が有効利用できることから変換効率の点で、またビーム品質の点で有利である。基本波の共振器の内部に波長変換素子を挿入し、高強度基本波から波長変換を行う場合がある (内部共振器型 SHG, intracavity SHG)。

ここでは、タイプ 1 の SHG を例に取り上げたが、タイプ 2 や SFG, DFG についても基本的な考え方は同じである。また、波長可変レーザーとして、光パラメトリック発振器 (OPO: optical parametric oscillator) が実現しているが、これも非線形光学結晶を用いた波長変換の例である。SFG の関係式 (4), (5) から次のように考えると理解しやすい。波長 λ_3 の短波長光を励起光として用いる。長波長の λ_1, λ_2 のいずれか、あるいは両方に対して構成した高反射の共振器内に波長変換素子 (位相整合条件が必須) を挿入し、励起光を入射する。あるしきい値強度以上の励起光を入射することで、共振器内でノイズから発生した長波長光 λ_1 あるいは λ_2 は共振器内を往復しながら増幅し、式 (4) の左辺から右辺へのエネルギー変換がレーザーのような発振現象を伴って生じる。これを OPO と呼び、波長変換素子の角度を変化させることで位相整合条件が変化し、出力波長をチューニングできるようになる。

擬位相整合

SHG を行う際、複屈折位相整合条件を満足しないと第 2 高調波の位相は揃わず、強度はある伝搬距離を周期として増減を繰り返す。強度の増減周期に着目し、減少に転じる部分の非線形分極波の位相 (すなわち非線形光学定数の符

号)を周期的に反転させ、減少を抑えて SHG 出力を得る方法が実現している。参考書としては、文献[8]がよくまとまっている。強誘電体結晶 LiNbO_3 (LN) 等の自発分極を外部電界印加によって周期的に反転させる方法が一般的で、この波長変換を擬位相整合 (QPM: quasi-phase matching) と呼ぶ。第 2 高調波強度はコヒーレンス長

$$l_c = \frac{\lambda_\omega}{4(n^{2\omega} - n^\omega)} \quad (9)$$

の 2 倍の長さを周期として増減するので、分極反転は l_c 間隔で行う (分極反転周期は $2l_c$ となる)。LN などの結晶で赤外光を緑色光に変換する場合は $l_c = 3 \sim 4 \mu\text{m}$ 、青色光を得るには $l_c = 1.5 \sim 2.5 \mu\text{m}$ となる。QPM は分極反転の形成が可能であるなら、「複屈折の小さい材料でも利用できる」「 d の最大成分を利用できる」「透明領域内の任意の波長で位相整合が可能になる」といった特徴を有している。大きな d 値が使えるので連続波レーザーのシングルパスでも十分な波長変換が可能となり、可視光や近紫外領域への波長変換、OPO などで積極的に応用され始めている。LN は最大成分 d_{33} を用いることができるが、この場合は z 偏光の基本波入射に対して、 d_{33} を介した非線形光学効果によって z 偏光の高調波が発生する。このような入出射光の偏光が全て平行な波長変換をタイプ 0 と呼び、QPM 素子で実現できる。また、QPM はウォークオフ角がゼロになるため、高効率変換、良好なビーム品質を得ることができる。

1.2.3 まとめ

非線形光学結晶を用いた波長変換を理解するために、光学の基礎的な部分から始めて解説を行った。実際の非線形光学結晶には、上記の光学特性に加え、化学的に安定で素子加工しやすいこと、レーザー照射による損傷耐性 (誘電破壊、カラーセンター、光誘起屈折率変化) に優れていることなどが求められる。次稿においては、これらの基礎を元に具体的な非線形光学結晶の紹介や、最新の波長変換の例について解説する。

参考文献

- [1] A. Yariv 著, 多田邦雄, 神谷武志監訳: 光エレクトロニクス—展開編— (丸善, 2000).
- [2] F. Zernike and J.E. Midwinter, *Applied Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, 1973).
- [3] 浅海勝征: 第二高調波発生位相整合 (青山社, 2001).
- [4] Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki and S. Nakai, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1818 (1995).
- [5] V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan and D.N. Nikogosyan, *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* (Springer-Verlag New York, 1995).
- [6] <http://www.as-photonics.com/SNLO/>
- [7] G.D. Boyd and D.A. Kleinman, *J. Appl. Phys.* **39**, 3597 (1968).
- [8] 宮澤信太郎, 栗村 直監修: 分極反転デバイスの基礎と応用 (オプトロニクス社, 2005).