



Title	3光波パラメトリック過程の位相整合法に関する一提案
Author(s)	三島, 瑛人; Mishima, Teruhito; 桜庭, 一郎 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 101, 9-15
Issue Date	1980-12-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41640
Type	departmental bulletin paper
File Information	101_9-16.pdf



3 光波パラメトリック過程の位相整合法に関する一提案

三島 瑛人* 桜庭 一郎*

(昭和 55 年 6 月 30 日受理)

Proposed Methods for Phase Matching in Three-Optical-Wave Parametric Processes

Teruhito MISHIMA and Ichiro SAKURABA

(Received June 30, 1980)

Abstract

In order to reduce the angles between the ray directions and to optimize efficiency, a new phase-matching method is proposed in three-optical-wave parametric interaction using crystals. It is shown that the interaction length in this manner is longer than that in the conventional collinear phase-matching method. The relation between three wavelengths is also considered in positive and negative crystals. Calculated results for the angles between the ray directions of parametric devices using α -HgS and Ag_3AsS_3 are presented.

1. 緒 言

レーザの出現により、強度が大きく、コヒーレンスの良い光が得られるようになると光領域においてもさまざまな非線形現象が観測されるようになった。物質の 2 次の非線形効果を利用した光パラメトリック過程もその一例である。この相互作用に基づく光パラメトリック周波数変換および光パラメトリック発振は光領域での周波数変換の手段として重要である。又、光パラメトリック周波数変換は赤外線の映像を可視光あるいは近赤外の映像に変換するパラメトリック映像変換の基礎技術としても重要である¹⁾。これらの光パラメトリック相互作用が有効に行われるためには、消滅光子と生成光子との間にエネルギー保存の法則および運動量保存の法則が成立する必要がある。特に、運動量保存の法則は、光波帯では非常に厳しい条件となるのが普通である。それは、一般には、相互作用の行われる領域の長さが光の波長より非常に大きいためである。この運動量保存の法則は位相整合の条件と呼ばれることが多いので、今後は後者を使用することとする。

位相整合条件を満足させるため、2 次の非線形性を利用するパラメトリック相互作用の場合には、結晶の複屈折が用いられる。すなわち、異常光線の伝搬速度が進行方向により異なることを利用して位相整合条件を満足させるわけである²⁾。ところが、異常光線においては波面法線方向と光線方向とが異なるため相互作用領域の長さが制限されることとなる。非線形効果を有効に利用するため、レンズ等により光ビームの断面積を小さくして電力密度を高めることが良く行われ

* 電子工学科 電子物理工学講座

るが、そのような断面積の小さな光ビーム同志の相互作用においては複屈折角（波面法線方向と光線方向との角度差）の影響が強く現われ相互作用領域が非常に短くなるという不利を生ずる。したがって相互作用領域を長くするため、3つの光波の光線方向を一致させる位相整合法が望ましい。このような光線方向を一致させる位相整合法として90°位相整合法が実用されている³⁾。この方法は、結晶の光学軸に垂直な方向で複屈折角が零になることを利用している。しかし結晶の温度に制限があるため、限られた波長帯でのみ有効である。

この論文では、3つの光波の光線方向の角度差を減少させ相互作用領域をより長くするための新しい位相整合法（光線方向差低減のための位相整合法と呼ぶことにする）を提案し、計算例を示し検討する。この新しい位相整合法は、ある条件のもとでは90°位相整合法に帰着する。

2. 光線方向差低減のための位相整合法

3つの光波が単軸結晶内部でパラメトリック相互作用する場合を考える。このとき、次の2式、

すなわちエネルギー保存の法則：

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \quad (1)$$

および位相整合の条件：

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 \quad (2)$$

が成立することが必要である。ただし、 ω_j ($j=1, 2, 3$) は光波の角周波数、 \mathbf{k}_j ($j=1, 2, 3$) は光波の波動ベクトルである。波動ベクトル \mathbf{k}_j の大きさは、光波の自由空間波長 λ_j および結晶の屈折率 n_j と次の関係がある。

$$|\mathbf{k}_j| = 2\pi n_j / \lambda_j = n_j \omega_j / c_0 \quad (3)$$

ここに c_0 は自由空間における光速である。

一般に式(1)が満足されると、式(2)は結晶の分散特性のため満足されない。したがって常光線と異常光線とを組み合わせて用いることが必要となる。ここで提案する位相整合は non-collinear な位相整合法*の一種であるが、後述するように collinear な位相整合法**から大きくは離れないので、ほぼ collinear な位相整合法における常光線と異常光線との組み合わせに従うものと考えて良い。collinear な位相整合が可能となる組み合わせを表1に示しておく⁴⁾。

表1 collinear な位相整合が可能となる常光線と異常光線の組み合わせ

	正結晶($n^e > n^o$)			負結晶($n^e < n^o$)		
$j=3$ の光波	O			E		
$j=2$ の光波	E	O	E	O	O	E
$j=1$ の光波	E	E	O	O	E	O
位相整合の type	I		II	I	II	

O: 常光線

E: 異常光線

2. 1 正結晶の場合

図1に正結晶におけるこの新しい位相整合法概念図を示す。波動ベクトル \mathbf{k}_j は実線で、異常光線の光線方向の単位ベクトル \mathbf{t}_j は破線で示してある。 \mathbf{t}_j が \mathbf{k}_j となす角（複屈折角） ρ_j は次式、

* non-collinear な位相整合法：3つの波動ベクトルがすべて平行ではないような位相整合法。

** collinear な位相整合法：3つの波動ベクトルがすべて平行であるような位相整合法。

より求められる⁵⁾。

$$\tan \rho_j = \frac{\{(n_j^e)^2 - (n_j^o)^2\} \tan \theta_j'}{(n_j^e)^2 + (n_j^o \tan \theta_j')^2} \quad (4)$$

ただし常光線の場合には t_j と k_j の方向が一致するので、 $\rho_j = 0$ とする。ここで、 n_j^e および n_j^o は λ_j の波に対する非線形光学結晶の主屈折率、 θ_j' は非線形光学結晶内部での波動ベクトル k_j が光学軸となす角である。正結晶では $n_j^e > n_j^o$ なので $0^\circ \leq \theta_j' \leq 90^\circ$ の場合 $\rho_j \geq 0$ となり、 t_j の方向は k_j と光学軸との中間となる。

後述するように、ここで提案する位相整合法は k_3 の大きさと、 k_1 または k_2 のいずれか一方の大きさとがほぼ等しいときにのみ有効なので

$$|k_3| \approx |k_2| \gg |k_1| \quad (5)$$

と仮定する。したがってこの位相整合法は透過帯域の広い結晶に対して有効である。この位相整合法では波動ベクトルの大きさがほぼ等しい2つの光波を同じ偏光とする。従って表1より、正結晶においては λ_3 の波と λ_2 の波とを常光線、 λ_1 の波を異常光線としなければならない。このようにして位相整合条件を満足させると、 $|k_1|$ が $|k_2|$ および $|k_3|$ に比較して非常に小さいため、 k_2 の方向と k_3 の方向はほぼ一致する。よって t_2 (k_2 の方向と一致) と t_3 (k_3 の方向と一致) もほぼ一致する。 k_1 の方向は、 t_1 が t_2 または t_3 と一致するようにとる。ここでは簡単のため、 t_1 を t_3 の方向にとるものとする。これは最適な条件ではないと思われるが、式(5)の条件下では大きな差異はない。すなわち

$$\theta_1' - \rho_1 = \theta_3' \approx \theta_2' \quad (6)$$

とする。このようにすると、 t_1 と t_3 とは一致し t_1 と t_2 とはほぼ一致する。故に、すべての光線方向がほぼ一致し、相互作用断面積の小さなパラメトリック相互作用においても、相互作用長がより長くなると考えられる。

なお、このとき次の関係がある (図1参照)。

$$\sin(\theta_1' - \theta_2') = \frac{|k_3| \sin \rho_1}{|k_2|} \quad (7)$$

3つの光線方向の角度差のうち最大のものを光線方向の最大角度差と呼ぶことにすると、この場合、光線方向の最大角度差は t_3 と t_2 とのなす角 (すなわち k_3 と k_2 とのなす角) $\theta_3' - \theta_2'$ となる。この角は、第2高調波発生 (SHG) の場合の walk off 角に相当する。通常の collinear な位相整合の場合には k_1 , k_2 および k_3 の方向がすべて一致するので、光線方向の最大角度差は異常光線である λ_1 波の複屈折角 ρ_1 となる。 ρ_1 は通常非線形結晶の場合、最大でも数度程度であり、 $\theta_1' = 0^\circ$ あるいは $\theta_1' = 90^\circ$ のとき零となる。 $\theta_1' = 0^\circ$ では位相整合条件を満足させることはできないが、 $\theta_1' = 90^\circ$ では可能となる場合がある。このとき $\rho_1 = 0^\circ$ となるため $\theta_1' = \theta_2' = \theta_3' = 90^\circ$ となり、 90° 位相整合と一致する。

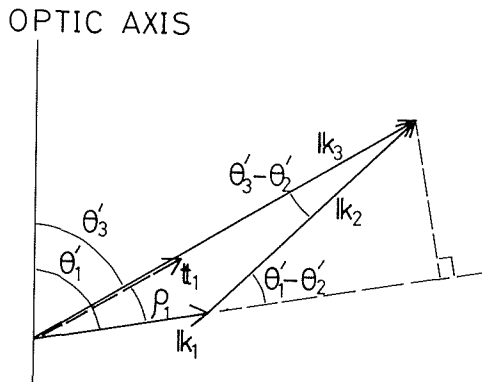


図1 正結晶における光線方向差低減のための位相整合法概念図 ($t_1 // k_3$ の場合)

この新しい位相整合法は本来 non-collinear な位相整合法であるが、式(6)より、 \mathbf{k}_3 と \mathbf{k}_1 とのなす角および \mathbf{k}_3 と \mathbf{k}_2 とのなす角はともに複屈折角 ρ_1 の程度である。実用に供されている非線形結晶では ρ_j が小さいので collinear と近似すると、式(1)~(3)より次式が必要条件となる。

$$(n_2^o - n_3^o) + \{n_f^E(\theta_1') - n_3^o\}(\omega_1/\omega_2) = 0 \quad (8)$$

ここで n_j^o は常光線の屈折率、 $n_f^E(\theta_j')$ は異常光線の屈折率を示す。正常分散を仮定すると左辺第1項は負となるので、第2項は正とならねばならない。すなわち $n_f^E(\theta_1') > n_3^o$ とならねばならない。このことは分散による屈折率の変化分より複屈折による屈折率の変化分が大きくなければならないことを示している。更に式(5)より $\omega_1/\omega_2 \ll 1$ となるから、左辺が零となるためには $n_f^E(\theta_1') - n_3^o$ が正の大きな値でなければならない。collinear な位相整合法では式(5)の条件がなく、従って、これとは逆に $\omega_1/\omega_2 \gg 1$ とすれば比較的容易に位相整合が可能である。換言すると、この位相整合法は分散が小さくかつ複屈折の大きな結晶でのみ実現可能となる。

2.2 負結晶の場合

図2に負結晶におけるこの新しい位相整合法概念図を示す。負結晶においては $n_f^E < n_3^o$ なので $0^\circ < \theta_j' < 90^\circ$ の場合、式(4)より $\rho_j \leq 0$ となり、 \mathbf{k}_j が \mathbf{t}_j と光学軸との間にある。

負結晶の場合にも、式(5)の条件が成立するときのみこの位相整合法が有効なので式(5)を仮定する。負結晶の場合には λ_3 の波と λ_2 の波を異常光線、 λ_1 の波を常光線とする。式(5)より $|\mathbf{k}_1|$ が小さいので \mathbf{k}_3 の方向と \mathbf{k}_2 の方向とはほぼ一致する。 ρ_3 は λ_j および θ_j' のゆるやかな関数なので、 ρ_3 と ρ_2 とはほぼ一致し、故に \mathbf{t}_3 と \mathbf{t}_2 とはほぼ一致する。従って \mathbf{t}_1 (\mathbf{k}_1 の方向と一致) を \mathbf{t}_2 または \mathbf{t}_3 と一致させると、すべての光線方向がほぼ一致する。ここでは、 \mathbf{t}_1 を \mathbf{t}_3 の方向にとることとする。すなわち

$$\theta_1' = \theta_3' - \rho_3 \approx \theta_2' - \rho_2 \quad (9)$$

となる。このとき位相整合条件が満足されると次の関係式

$$\tan(\theta_3' - \theta_2') = \frac{|\mathbf{k}_1| \sin \rho_3}{|\mathbf{k}_3| - |\mathbf{k}_1| \cos \rho_3} \quad (10)$$

が成立する(図2参照)。

この場合、光線方向の最大角度差は \mathbf{t}_1 と \mathbf{t}_2 のなす角 $\theta_1' - (\theta_2' - \rho_2)$ となる。通常の collinear な位相整合の場合には \mathbf{t}_1 , \mathbf{t}_2 および \mathbf{t}_3 は三者三様の方向を示すが、それらの角度差のうちで最大のものを光線方向の最大角度差とする。

$\theta_3' = 90^\circ$ の場合には、式(9)および(2)より $\theta_1' = \theta_2' = 90^\circ$ となる。したがって $\rho_2 = \rho_3 = 0^\circ$ 、すなわち、正結晶の場合と同様に 90° 位相整合に帰着する。

正結晶の場合と同様に collinear な位相整合で近似すると式(8)に対応するのは次式である。

$$\{n_3^E(\theta') - n_3^o(\theta')\} + \{n_1^o - n_3^o(\theta')\}(\omega_1/\omega_2) = 0 \quad (11)$$

OPTIC AXIS

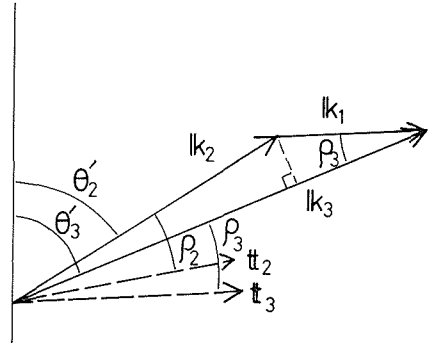


図2 負結晶における光線方向差低減のための位相整合法概念図 ($\mathbf{t}_3 \parallel \mathbf{k}_1$ の場合)

ここで $\theta'_1 = \theta'_2 = \theta'_3 = \theta'$ としてある。正常分散を仮定すると左辺第1項が負であり、よって第2項は正とならねばならない。更に $\omega_1 / \omega_2 \ll 1$ であるから $n^o - n_s^s(\theta')$ は正の大きな値にならねばならない。すなわち、負結晶の場合にも、分散が小さくかつ複屈折の大きな結晶でのみこの位相整合法が実現可能となる。

3. 数値計算例

ここで提案した位相整合法は原理上、パラメトリック周波数変換、光パラメトリック増幅および発振のいずれにも適用可能であるが、ここでは正結晶 α -HgS および負結晶 Ag_3AsS_3 を用いる光パラメトリック増幅についての数値計算例を示す。光パラメトリック増幅においてはポンピング波長を λ_3 とするとエネルギー保存則と位相整合条件とを同時に満たす波長 λ_1 と λ_2 の光波が増幅される。もし光パラメトリック増幅器に適当な光共振器を付加しポンピング電力があるしきい値を越えると発振に到る⁶⁾。これは光パラメトリック発振と呼ばれ、光領域での周波数可変発振器として重要である⁷⁾。

3. 1 α -HgS

α -HgS は正結晶なので、式(1)~(4)、(6)および(7)を連立させて得た結果を図3に示す。 α -HgS の分散式は G. C. Bhar⁸⁾ によった。 λ_3 すなわちポンピング光の波長は $1.0642 \mu\text{m}$ とした。実線がここで提案した位相整合法の場合の光線方向の最大角度差である。比較のため collinear な位相整合による場合の光線方向の最大角度差を破線で示した。 $\lambda_1 > 11 \mu\text{m}$ の領域は α -HgS の吸収帯となるので省いてある。

図3より λ_1 が大きく λ_2 が小さい場合にはこの位相整合法の効果が大きく、collinear な位相整合法に比較して光線方向の最大角度差が小さくなることがわかる。これは式(5)の条件が満足されるためである。式(5)の条件が満足されない $\lambda_1 = \lambda_2 = 2.1284 \mu\text{m}$ でも、この位相整合法による光線方向の最大角度差は collinear のそれに比較してわずかに大きくなるだけである。式(6)の代わりに最適な条件を仮定すれば、この角は更に減少するものと思われる。図3の左端で collinear な位相整合法による光線方向の最大角度差が急激に減少しているのは、ほぼ 90° 位相整合となるためである。

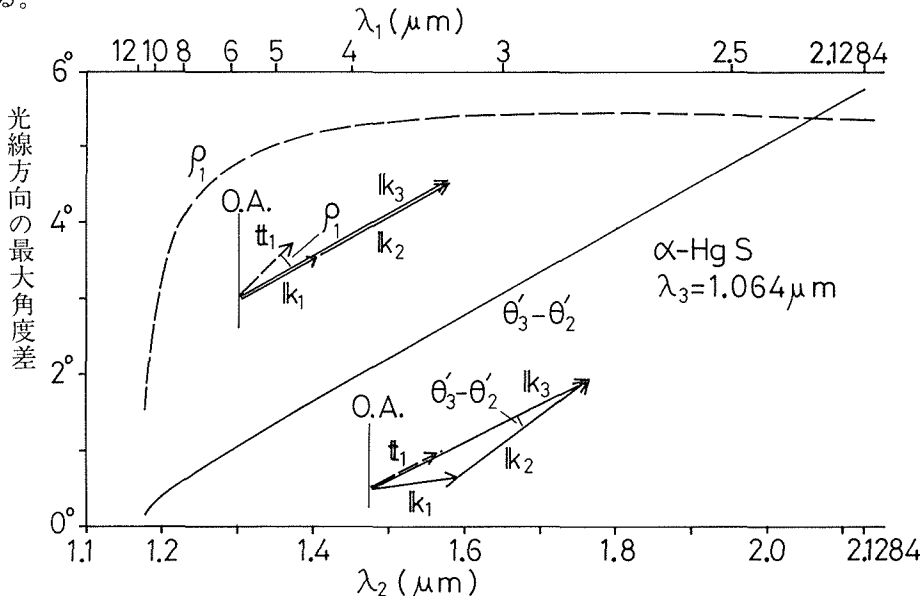


図3 α -HgS を用いた光パラメトリック増幅における光線方向の最大角度差

3. 2 Ag_3AsS_3

負結晶の例として Ag_3AsS_3 (プルースタイト) を用い、 $\lambda_3=1.0642\mu\text{m}$ でポンピングしたパラメトリック増幅の数値計算結果を図4に示す。数値計算は式(1)~(4), (9)および(10)を連立させて解いた。 Ag_3AsS_3 の分散式は M. V. Hobden⁷⁾によった。

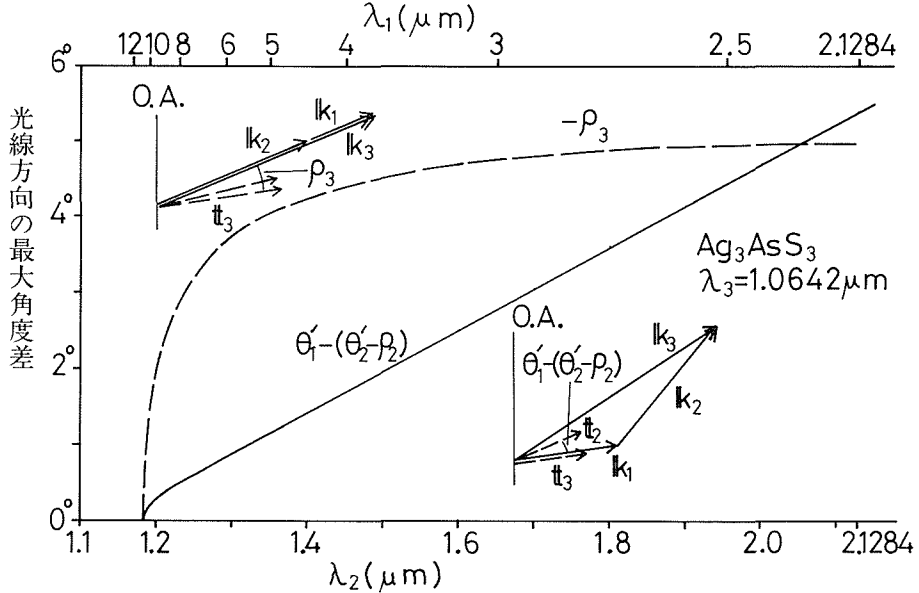


図4 Ag_3AsS_3 を用いた光パラメトリック増幅における光線方向の最大角度差

この新しい位相整合法による光線方向の最大角度差 $\theta'_1 - (\theta'_2 - \rho_2)$ を実線で示した。collinear な位相整合においては t_1 と t_3 のなす角 ρ_3 の絶対値が最大であったので、それを破線で示した。

図4より、正結晶のときと同様に、 λ_1 が大きく λ_2 が小さいとき、すなわち式(5)の条件が満たされるとき、この新しい位相整合法の効果が大きいことがわかる。また、式(5)の条件が満たされない $\lambda_1 = \lambda_2 = 2.1284\mu\text{m}$ の場合にも collinear な位相整合法よりわずかに光線方向の最大角度差が増す程度である。式(9)の代わりに最適な条件を仮定すれば、この角は更に小さくなると推察される。 $\lambda_1 = 10.5019\mu\text{m}$, $\lambda_2 = 1.1842\mu\text{m}$ では、この新しい位相整合法および collinear な位相整合法はともに 90° 位相整合となるため光線方向の最大角度差はいずれの位相整合法によっても零となる。

4. 結 論

パラメトリック相互作用における non-collinear な位相整合法の一つである光線方向差低減のための位相整合法を提案し、数値例を示した。それらについて検討した結果を以下にまとめる。

- (1) この位相整合法は、非線形結晶の透過波長帯域が広く、分散が小さく、かつ複屈折が大きい場合、例えば $\alpha\text{-HgS}$ や Ag_3AsS_3 に対して有効である。
- (2) この位相整合法は、相互作用する3つの光波のうちの1つの波長が、他の2つの波長に比較して非常に長いときに有効である。
- (3) この位相整合法は3つの光波のビーム径が小さいときに、相互作用長を増加させるために効果がある。

以上、光線方向差低減のための位相整合法について述べたが、この位相整合法は non-collinear な位相整合のため、光共振器を付加する場合には工夫が必要と思われる。この問題は今後の課題としたい。おわりに資料整理に助力された庄司由利事務官に感謝する。

参 考 文 献

- (1) 平山裕光, 小柳幸次郎, 三島瑛人, 桜庭一郎, “ブルースタイト・アップコンバータにおける接線整合の温度依存性”, 信学論(C), Vol. J 63-C, 5, p. 311 (昭 55-05)。
- (2) 三島瑛人, 桜庭一郎; “パラメトリック映像変換における位相整合と結像”, 信学論(C), Vol. 57-C, 7, p. 229 (昭 49-07)。
- (3) Jantz, W. and Koidl, P. ; “Efficient up-conversion of 10. 6- μ m radiation into the green spectral range”, Appl. Phys. Lett. , Vol. 31, 2, p. 99 (1977) .
- (4) Midwinter, J. E. and Warner, J. ; “The effects of phase matching method and of uniaxial crystal symmetry on the polar distribution of second-order non-linear optical polarization” , Brit. J. Appl. Phys. , Vol. 16, 8, p.1135 (1965) .
- (5) ロッシ著, 福田国弥他訳; “光学”, p.362, 吉岡書店 (1970)。
- (6) Bjorkholm, J. E. ; “Efficient optical parametric oscillation using doubly and singly resonant cavities” , Appl. Phys. Lett. , Vol. 13, 2, p. 53 (1968) .
- (7) Hanna, D. C. , Luther-Davis, B. , Rutt, H. N. , and Smith, R. C. ; “Reliable operation of a proustite parametric oscillator” , Appl. Phys. Lett. , Vol. 20, 1, p. 34 (1972) .
- (8) Bhar, G. C. ; “Refractive index interpolation in phase-matching”, Appl. Optics, Vol. 15, 2, p. 305 (1976) .
- (9) Hobden, M. V. ; “The dispersion of the refractive indices of proustite (Ag_3AsS_3)” , Opto-electronics, Vol. 1, 3, p. 159 (1969) .