

光ファイバーにおける第二次高調波発生

長岡技術科学大学 電気系

渡辺 裕一
高田 雅介

Second harmonic generation in optical fiber

Yuichi Watanabe and Masasuke Takata

Department of Electrical Engineering, Nagaoka University of Technology

1. はじめに

光の波長変換を主目的とする第二次高調波発生 (SHG) に用いられる非線形光学材料は、その現象の原理上の要請から反転対称性を有しない単結晶材料に限定されている¹⁾。よって、構造に並進対称性を欠き、光学的に等方的な性質を示すガラス・非晶質材料は本質的に第二次高調波を発生し得ない。ところが近年、Ge および P を添加した SiO₂ ガラス系光ファイバーで変換効率が 5% にも及ぶ SHG が観測された。この現象はガラス中の微視的構造欠陥に起因するとされているが不明な点も多い。ここでは①現象発現の条件、②発現機構、③ガラス中の微構造との関連を紹介する。

1. 二次高調波発生の条件

ガラスファイバーにおける SHG 観測には、その前段階としてレーザー光の長時間照射による SHG 活性化プロセスが必須となる。Fig. 1 に Ge 添加 SiO₂ ファイバーについて、Nd:YAG レーザー光 (波長 1064 nm) 照射時間に対する SHG 強度の変化を示す²⁾。使用したレーザーは cw モードロック、Q スイッチタイプでパルス幅 100-130 psec、ピークパワー ~70 kW、繰り返し周波数

1250 Hz のスペックを有する。照射直後は SHG は観測されないが、2 時間前後の照射で一度 SHG が観測されるとその強度はさらなる照射時間の延長に伴って指数関数的に増加し、十数時間ほどで飽和する。この“レーザー光誘起” SHG 活性は光照射停止後 2~3 週間で変換効率として半分ほどに減衰するが、数分の再照射で回復する。また変換効率の飽和値は照射レーザー光パワーに依存し、飽和に要する時間は平均パワー 0.3 W で 3 時間程度である。ただしピークパワーとして 5 kW を有する光でないと SHG 活性とはならない³⁾。さらに変換効率はファイバー長にも依存し、40 cm 程が最適で 5% を越える変換効率が達成される事もある。これ以外に、Table 1 に示すように⁴⁾ ファイバーとしてそのコアに Ge を含むことも SHG の必須条件となる。

2. SHG 活性化機構

反転対称性を有する物質で純光学過程により二次高調波が発生する過程には、電気 4 極子相互作用⁵⁾

$$\mathcal{H}_{\text{quad.}} = e^2 |A|^2 / 2mc^2 \quad (1)$$

による非線形分極が考えられるが、ここで取り上

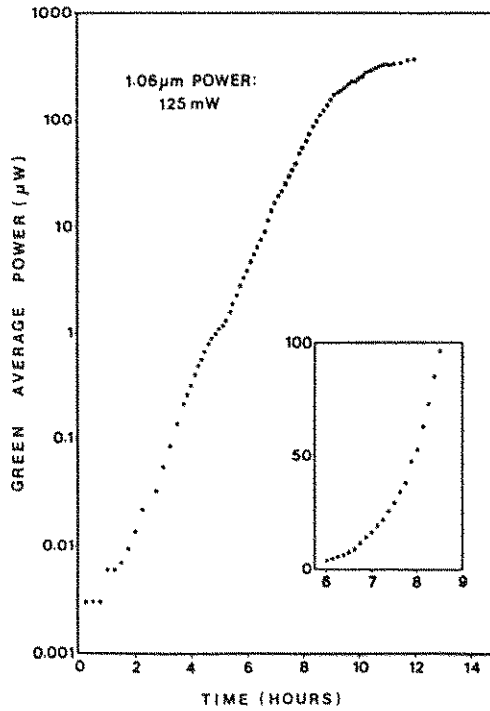


Fig. 1. ガラスファイバーからの SHG 強度の YAG 基本波照射時間依存性

Table 1. ガラスファイバーの SHG : ファイバー諸特性と変換効率

Fiber	Dopant		λ_c (μm)	% Δ	Average 1.06- μm Coupled Power (mW)	Conversion Efficiency	GeO ₂ (mol%)
	Core	Cladding					
1	Ge-P	P-F	1.24	+0.35 -0.15	120	≤ 0.1	4
2	Ge		1.14	0.38	120	≤ 0.1	3.5
3	Ge		1.14	0.3	120	≤ 0.1	3.0
4	Ge-P-F	Ge-P-F	0.90	0.33	90	≈ 1.5	6
5	Ge	Ge-P-F	1.05	0.52	50	≈ 1.5	6.2
6	Ge-P		^a	2.2	200	< 0.05	21
7		F	1.15	0.3	120	0	0
8	P	P	1.0	0.3	100	0	0

^aMultimode.

げている SHG とは比較にならないほど弱く、光照射時間依存性も説明できない。Stolen らはガラス中の永久双極子モーメントを有する構造欠陥の存在を仮定して以下に述べるモデルによりガラスファイバーにおける高効率 SHG を説明した⁶⁾。

まず電気 4 極子相互作用により発生した 2 次高調波が三次の非線形光学過程により基本波と周波数混合を起こし、二次の非線形光学効果の一つである光整流と同様、系内に(2)式で表される直流分極を誘起する。

$$P_{ac} = 3/4 \chi^{(3)}(0 = -2\omega + \omega + \omega) \times |E(2\omega) * E(\omega)E(\omega)| \cos \Delta k z, \\ \Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega) \quad (2)$$

ここで Δk は位相の不整合を意味し、屈折率の実測値から Δk を見積るとファイバー中に $40 \mu\text{m}$ 程の「周期を持った直流分極」が形成されることになる。ファイバー中の永久双極子モーメントを持った欠陥はこの直流分極方向に配向され、しかも高効率 2 次高調波発生に必要な位相整合条件を「自動的」に満足する状態が達成されることになる。SiO₂ ガラスにおける三次非線形感受率 ($\sim 10^{-14}$ esu) を用い、上述の過程における二次非線形感受率を評価すると 7.7×10^{-13} esu が得られる (KDP: $\chi^{(2)}_{123} = 2.34 \times 10^{-9}$ esu)。

このモデルに基づいて Stolen らは YAG 基本波に加えて 2 倍波を同時にファイバーに照射する事により SHG 活性化に要する時間が大幅に短縮されることを示した。この場合、同時照射した 2 次高調波は電気 4 極子相互作用により発生する 2 次高調波よりも格段に強い強度を持ち、より強い直流分極を誘起すると考えられる。

3. ガラス中の微構造と SHG

前節で述べた光学的な原理には、①永久双極子モーメントを有する欠陥が存在すること、②欠陥が SHG 活性化過程により周期的分布を実現することが前提となっている。また上記モデルでは SHG 活性化に多かれ少なかれ時間を要する事が説明できない。ここではその実験的検証を進めることにする。

まず初めに SHG 活性化処理によるファイバー中での周期的位相格子形成を取り上げる⁷⁾。Fig. 2

に SHG 活性化処理前後のファイバーのラマンスペクトルを示す。SHG 活性化処理前後で特にラマン散乱強度に変化は観測されていない。Fig. 2 よりもさらに測定時間もしくは積算回数を増やすと SHG 活性化前後でラマンスペクトルに微妙な変化が現れる。Fig. 3 には SHG 活性化処理を施したファイバーの光照射端部から $15 \mu\text{m}$ および $33 \mu\text{m}$

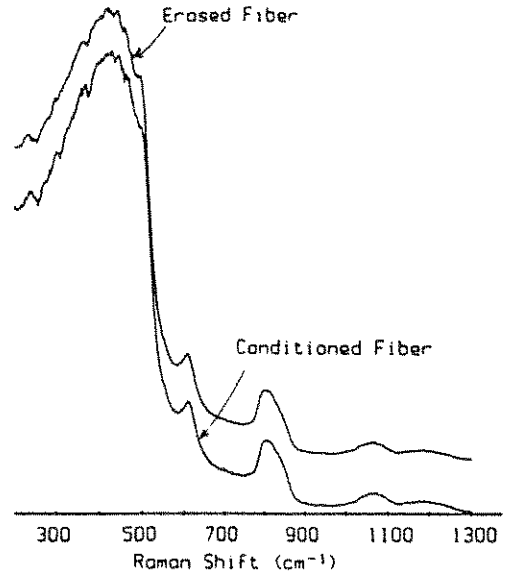


Fig. 2. SHG 活性化処理前後のファイバーの全長に渡るラマン散乱

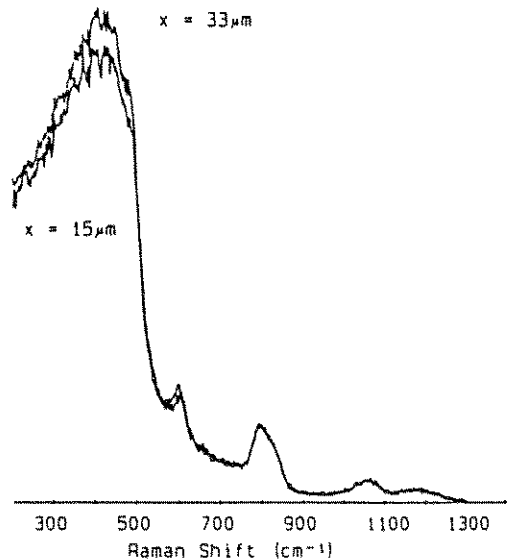


Fig. 3. SHG 活性化ファイバーの光照射端部からの距離と局所的ラマンスペクトル

μm の部位におけるラマンスペクトルを示す。400 cm^{-1} に位置する SiO_4 四面体の全対称伸縮モード及び607 cm^{-1} の“欠陥帯”(Si-O結合からなる環状構造に起因するとの説もある)に明らかな変化がみられる。Fig. 4はSHG活性化前後のファイバーについて光照射端部からの距離に対するラマン散乱強度を示す。SHG活性化ファイバーでは約35 μm の周期で散乱強度に変化が観測されている。このことは先述のStolenモデルのうち、周期的位相格子が形成されることの直接的検証の1つと考えられる。

次に、SHG活性を担うガラス中の欠陥種を取り上げる。SHG活性化の条件としてガラス中にGeを含むことが必須であることは既に述べた。これに基づいてSHG活性を担う欠陥種はGeO分子であると報告⁸⁾がなされているが、いま一つ実証の根拠に乏しい。一方、SHG活性とガラス中の欠

陥種を実験的に評価した研究が最近なされた⁹⁾。Fig. 5にSHG活性化前後の光ファイバー中のGe-E'中心の濃度とファイバー長の関係を示す。SHG活性化処理後明らかにGe-E'濃度は増加している。Fig. 6はコア添加物としてGeのみを含むファイバー(a)及びGe, Pの両方を含むファイバー(b)に対するSHG活性化前後の実測ESRスペクトルである。図より明らかなようにGe, P両方含むファイバーの方がSHG活性化処理によるGe-E'中心の相対的増加量が圧倒的に多い。また変換効率の飽和値もGeのみを含むファイバーが1%程度であるのに対しGe, Pの両方を含むファイバーは5%と大きな値を示す。このことは「光照射によって新たに生成した欠陥」がSHGを担うことを意味し、SHG活性化に要する光照射時間はこの欠陥生成に費やされていることが示唆される。

さて、Ge-E'中心はSi-E'と共に SiO_2 系光ファイバー中に存在する最もポピュラーな欠陥種で、ファイバー線引き工程や放射線照射によって生成する¹⁰⁾。電荷バランスとして対称性の低い $\equiv\text{Ge}$ 構造を有するため、微視的には永久双極子モーメントを持つことになりSHG活性へ直接寄与している可能性がある。しかしながらガラス中の $\equiv\text{Ge}$ -O結合を開裂させたり、 $\equiv\text{Ge}^+$, ^-O 間で電荷移動を起こしてGe-E'中心を形成するにはYAG基本波の光子エネルギーでは不十分である。予備的な実験からYAGの第四次高調波照射でGe-E'中心の濃度が増大することが明らかにされているが、ではその四次高調波が如何なる過程で基本波のみの照射から発生するかということに関しては現時点では明確にされていない。おそらく、複数の非線形光学過程の有機的なつながりが欠陥形成に十分なエネルギーをもつ光を発生させるのだろう。

おわりに

以上、光ファイバーにおける第二次高調波発生について述べた。さらなる現象の解明には欠陥種の確定、その生成機構、発振モードとの関係等も含めた総合的な評価・解析が必要であろう。また実用的には変換効率は約5%で、既存のKDP等に

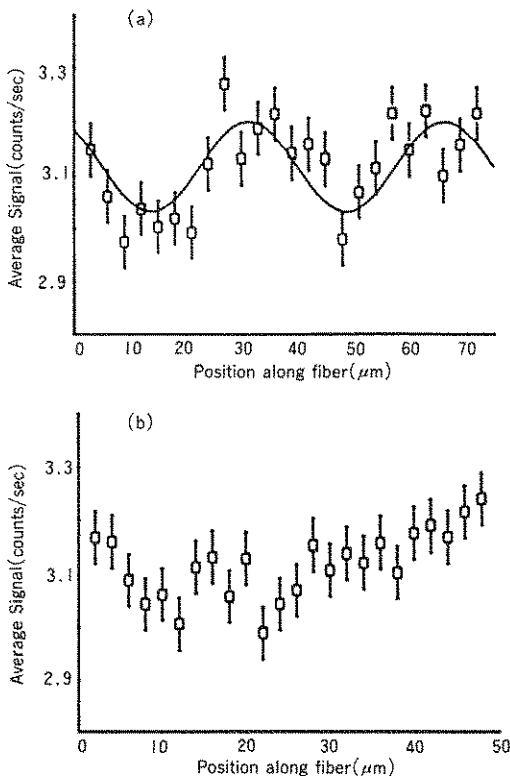


Fig. 4. ファイバーの光照射端部からの距離と局所的ラマンスペクトルの強度の関係: a)SHG活性化後 b)同前

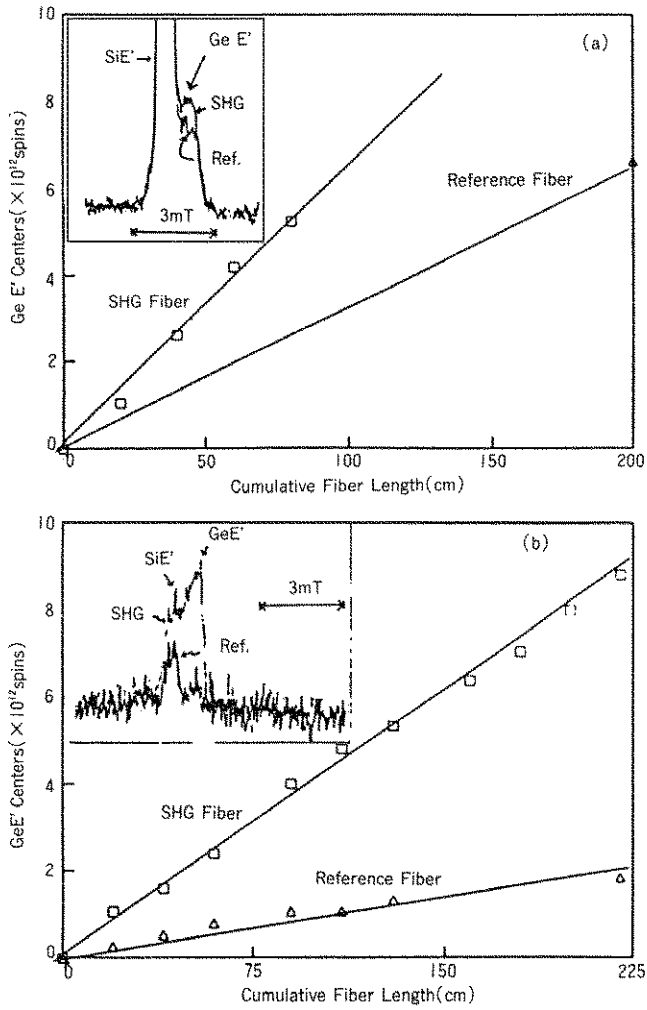


Fig. 5. SHG 活性化処理前後の Ge-E' 中心濃度の変化 : a) Ge 添加ファイバー b) Ge, P 共添加

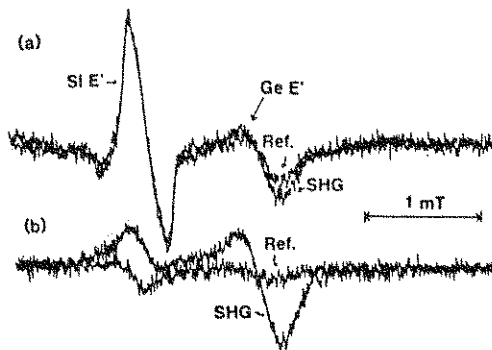


Fig. 6. SHG 活性化処理前後のファイバーの ESR スペクトル
a) Ge のみ添加 b) Ge, P 共添加

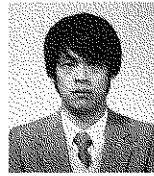
比べれば低い色素レーザーを励起する程度の事には十分応用可能である。また、位相整合条件が自動的に満足され得るので、複雑な光学系の設定（使用波長によって位相整合角 and/or 変換素子温度を変える等）が不要となることは実用上特に重要な効果である（実際に Kr⁺ レーザーについて特に設定を変えずともその二次高調波 323.5 nm を得ている例もある¹¹⁾）。

最後に、この現象は SiO₂ 系光ファイバーのみならず他のガラス・非晶質系でも発現し得ることを認識すれば、さらに大きな変換効率を有する材料が発見される可能性を秘めていることを強調したい。もちろん現時点での微弱な SHG 観測自体は高出力レーザーの出現に負うところが大きいわけだが「現象そのもの」は自然科学の原理に何ら反することのない“きれいな”結果なのである。

参考文献

- 1) 例えば「レーザーハンドブック」, 朝倉書店 (1973)
- 2) U. Osterberg and W. Margulis, *Opt. Lett.*, **11** (8), 516 (1986).
- 3) U. Osterberg and W. Margulis, *Opt. Lett.*, **12** (1), 57 (1987).
- 4) M. A. Saifi and M. J. Andrejco, *Opt. Lett.*, **13** (9), 773 (1988).
- 5) 例えば H. Eyring, L. J. Walter and G. E. Kinball, "Quantum Chemistry", John Wiley & Sons, NY (1944).
- 6) R. H. Stolen and H. W. K. Tom, *Opt. Lett.*, **12** (8), 585 (1987).
- 7) A. Kamal, D. A. Weinberger, and W. H. Weber, *Opt. Lett.*, **15** (11), 613 (1990).
- 8) N. M. Lawandy, submitted to *J. Opt. Soc. Am. B*.
- 9) T. E. Tsai, M. A. Saifi, E. J. Friebele, D. L. Griscom, and U. Osterberg, *Opt. Lett.*, **14** (18), 1023 (1989).
- 10) in "Defects in Glasses", (Materials Research Soc., Pittsburgh, Pa., 1986).
- 11) B. Valk, E. M. Kim, M. M. Salour, *Appl. Phys. Lett.*, **51** (10), 722 (1987).

〔筆者紹介〕



渡辺 裕一 (わたなべ ゆういち)
 昭和 59 年 3 月 東京都立大学工学部工業化学科卒業。
 昭和 61 年 3 月 同大学大学院工学研究科修士課程修了。
 平成元年 3 月 東京工業大学大学院理工学研究科博士後期課程修了, 工学博士。
 同年 4 月より長岡技術科学大学工学部電気系助手, 現在にいたる。

〔筆者紹介〕



高田 雅介 (たかた まさすけ)
 昭和 46 年 東京大学工学部工業化学科卒業。
 昭和 48 年 同大学大学院修士課程修了。
 昭和 51 年 同大学大学院博士課程修了, 工学博士。
 昭和 51 年 東京大学工学部助手。
 昭和 55 年より長岡技術科学大学工学部電気系助教授, 現在にいたる。
 昭和 54 年~昭和 56 年 米国レンセラー工科大学博士研究員。
 昭和 57 年 窯業協会進歩賞授賞。

〔連絡先〕

〒 940-21 新潟県長岡市上富岡町 1603-1
 長岡技術科学大学 電気系
 TEL 0258-46-6000

Abstract

Second harmonic generation (SHG) in Ge doped optical fiber is briefly reviewed. Conditions of SHG in the glasses, optical mechanisms of the phenomenon, and the relationship between glass structure and SHG with special attention to structural defects are explained in detail by citations of several experimental and theoretical works. It should be emphasized that in principle, the occurrences of SHG are not limited to optical fibers and there remains the possibility to find out other glassy materials having higher SHG efficiency.