

非線形光学の基礎～位相共役波とその応用～

東京理科大学 基礎工学部 材料工学科 渡辺 裕一

Introduction to Nonlinear Optics ～Phase-conjugate wave and its application～

by Yuichi Watanabe

Department of Materials Science & Technology
Faculty of Industrial Science & Technology
Science University of Tokyo

1. はじめに

非線形光学の歴史はレーザーの開発とほぼ同時期にさかのぼる。第二高調波の発生¹⁾はルビーレーザーの開発²⁾の翌年に、また、位相共役波の発生³⁾は1970年代後半にそれぞれ確認されている。近年、これらの非線形光学効果に基づく現象が、エネルギー利用分野や情報処理・通信分野に優れた応用をもたらすことが示唆され、材料探索を含めた幅広い研究開発が進められている。本稿では特にユニークな現象である位相共役波発生をとりあげ、その発生機構の現象論的な解説と応用を紹介する。他の興味ある現象については本誌の非線形光学特集号を参照されたい⁴⁾。

2. 光強度に依存した屈折率変化

位相共役波の発生には、非線形光学効果が介在する。以下にこの効果の起源を述べる。

光と物質の相互作用は、光の持つ電場成分と物質内の荷電粒子（多くの場合電子）のあいだに生じる。すなわち、光の電場方向と逆の方向に電子は加速され、その平衡位置から変位する。変位によって物質内に誘起分極 P が生じる。分極 P は一般に光の電場成分 E の関数である。Fig. 1 に誘起分極 P と光電場の関係を示す。(a)の様に電場

が小さい場合、 P は E に比例すると見なせるが、電場が大きくなると(b)、もはや比例関係は成立しない。この時、誘起分極 P を次式のように光電場のべき級数で展開して解析的近似表現とする。

$$P = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E E + \chi^{(3)} E E E + \dots)$$

べき級数の係数のうち、 $\chi^{(1)}$ は線形成分に相当し、線形光学感受率と呼ばれる。これに対して $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$ など高次の成分をそれぞれ2次、3次の非線形光学感受率と呼ぶ。非線形光学効果は、有限の非線形分極が担う現象で、和・差周波の発生（光の波長変換）や以下に述べる光強度に依存した屈折率変化などの起源となる。

誘起分極 P は物質の誘電感受率 ε と次の関係にある。

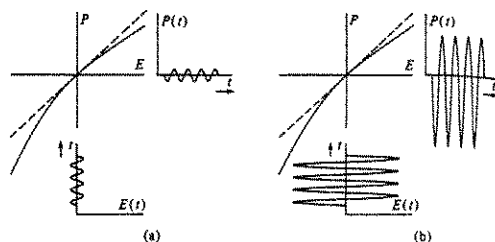


Fig. 1 The effect of a nonlinear dependence of the polarization P on the electric field E . (a) for small input fields (b) At larger field

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + P/E \quad (\text{MKS})$$

物質の屈折率 n は $\varepsilon / \varepsilon_0$ の平方根で与えられる。分極 P が E に比例する範囲内では、上式からも明らかな通り、 ε または n は一義的に決まる物質固有の値となる。一方、光の電場成分が線形近似の適用範囲内をこえるほど極端に大きな場合、 ε または n は電場 E に依存する。

三次の非線形項を取り入れた場合、誘電感受率は次式で記述される。

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + \varepsilon_0 \chi^{(1)} + \varepsilon_0 \chi^{(3)} EE$$

これより屈折率 n は

$$n = n_0 + (\chi^{(3)} EE) / 2n_0 \\ = n_0 + n_2 I$$

で与えられる。 n_0 、 n_2 はそれぞれ線形屈折率、非線形屈折率で、右辺では電場 E の二乗が光の強度 I に比例する事を考慮している。上式は3次の非線形光学効果によって物質の屈折率が光の強度に依存することを表している。

屈折率が関係する現象の一つに光の反射が挙げられる。光の反射は屈折率の異なる媒質間の界面で生じる。屈折率の異なる界面に垂直に入射した光の反射率（反射光強度 I_r の入射光強度 I_i に対する割合）は、媒質の屈折率をそれぞれ n_1 、 n_2 ($> n_1$) とすると

$$R = I_r / I_i = [(n_2 - n_1) / (n_2 + n_1)]^2$$

で与えられる。これより、媒質2が非線形屈折性を有するとき、反射率 R は光強度に応じて変化することが容易に理解される。すなわち、極言すれば非線形媒質は入射光強度に応じて光を通したり (R 小)、鏡 (R 大) になったりするのである。

3. 位相共役波とは

屈折率 n は、光の反射の程度を決定すると共に媒質中を進行する光波の位相速度を減少させる働きがある。すなわち、真空中での光速を c_0 とすると物質中での光波の位相速度 c は

$$c = c_0 / n$$

で与えられる。一般に屈折率は1よりも大きく、物質中で光波は遅く進行する。

Fig. 2 に鏡に向かって進行する光波の様子を示す。進路の一部には屈折率が1より大きい物質、例えばガラスが配置されている。(a) で① $t =$

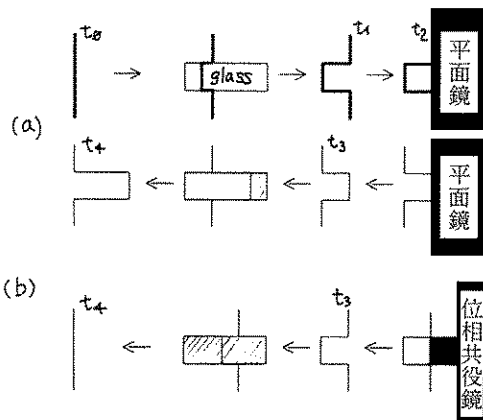


Fig. 2 Propagation of light through a phase-modulating substance.

(a) Reflection with a nominal mirror

(b) Reflection with a phase-conjugating mirror.

t_0 の位置から右側に進行した光波のうち、ガラスを通過した部分は位相速度の減少の結果、 $t = t_1$ で波面の一部に遅れが生ずる。これが $t = t_2$ において平面状の鏡で反射されるとちょうど反転した形の波面 ($t = t_3$) が逆方向に進行することになる。光波の一部は再びガラスを通過する際に位相に遅れを生じる。すなわち、 $t = t_0$ で平面状で右向きに進行する波面は、一連の過程をへて $t = t_4$ で凹面状で左向きに進行する光波に変換される。

位相共役波は Fig. 2 (b) に示す $t = t_3$ に示す光波に相当する。この光波は (a) の $t = t_1$ での波形と全く同一の波面を有していながら、進行方向は逆向きと成っている。よって (b) $t = t_4$ でガラスを通過したのちの波形は $t = t_0$ の波形と一致することになる。この場合、位相共役波の発生は図に示した位相共役鏡と称する光波の反射媒体が担う。位相共役波の波面は、位相共役鏡に入射する以前に位相が遅れた部分が進行し、位相が進んだ部分に遅れが生ずる状態にある。この光波を鏡による反射で発生させる場合、反射に時間差を導入すればよい。すなわち「鏡」として図示した様な凸状の反射面（反射が空間的に異なる部位で起こる）を考慮すると、入射前の波形が保持され、かつ進行方向が反転する事がよく理解でき

る。

位相共役鏡は光路中に配置された物体による波面の乱れを補正する働きがある。上記の例では、波面の乱れが既知の場合の位相共役鏡としての形状が与えられている。実用上重要となるのは、時間的、空間的に任意の波面の乱れが生じた際にその位相共役波を発生させることにある。

4. 光波の干渉と位相共役波発生

位相共役波の発生には様々な方法⁵⁾があるが、ここでは対向励起配置の縮退四光波混合法を紹介する。

さて、二媒質間の屈折率差が光の反射の程度を決定すること、3次の非線形光学効果によって媒質の屈折率が光の強度に依存することは既に述べた。一方、光は波動特有の現象である干渉作用を持ち合わせている。Fig. 3 に対向して進む二光波の干渉の様子を示す。干渉作用の結果、空間的に電場振幅の大きい部分とこれが恒常的にゼロとなる部分が形成される。電場振幅が大となる部分と恒常的にゼロと成る部分では、非線形光学効果によって屈折率差が生じる。すなわち、これらの部

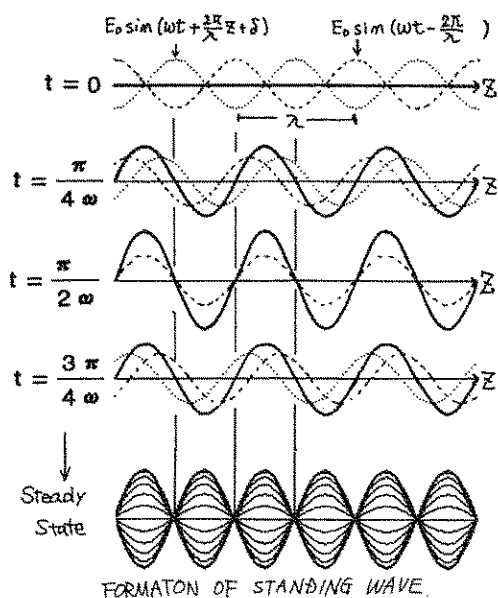


Fig. 3 Interference of two counter-propagating waves.

位は鏡として光を反射する作用を持つことになる。

媒質内の一部に注目して位相の遅れが干渉作用に及ぼす影響を考える。Fig. 4 で、ある空間的部位(縦軸で示した位置)における電場振幅が最大となる場合、2 光波の位相差がないと仮定する。さて、左から進行してくる光波に遅れが生じた場合、干渉縞は遅れてきた光波側に移動する。すなわち、二光波の干渉はこれに携わる光波の時間的な遅れ(または進み)を干渉縞の空間的な移動に変換する作用を持つ。

干渉縞の空間的な移動は「鏡」の移動に相当する。これを踏まえて位相共役波の発生を考察する。Fig. 5 (a) に角度 θ で非線形光学材料に二光波 (A, B) を入射した場合を示す。二光波の干渉作用の結果、両光波と $1/2\theta$ の角度をなす方向に干渉縞、すなわち反射面が形成される。ここに第3の光波 C を光波 A と反対側から入射する

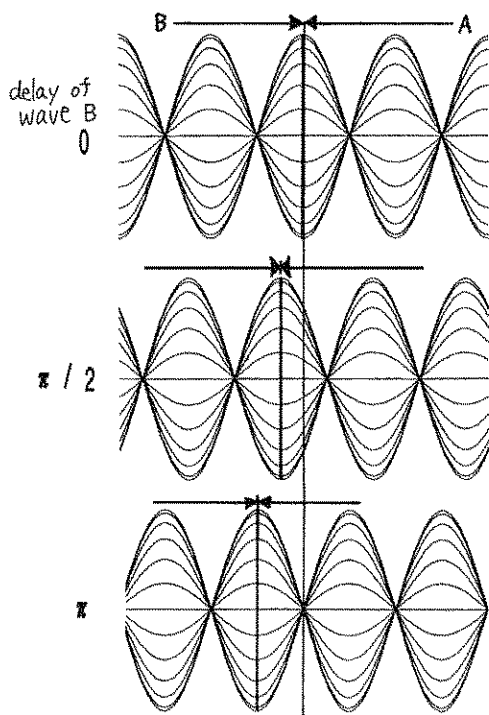


Fig. 4 Effect of difference in the phases of two counter-propagating waves upon the formation of interference pattern.

Table 1 Origin for nonlinear optical polarization⁵⁾

Origin	Substance	$\chi^{(3)}$ (esu)	response (sec)
Optical Kerr effect	Na vapour	$10^{-13} - 10^{-12}$	$10^{-12} - 10^{-11}$
Molecular reorientation	CS ₂ , Nitrobenzen	$10^{-14} - 10^{-12}$	10^{-13}
Bound electron	Ge, Si, GaAs, CdS, CdSe	$10^{-12} - 10^{-10}$	$< 10^{-15}$
Free carrier effect	n-InSb, n-InAs, CdHgTe	$10^{-10} - 10^{-7}$	$< 10^{-13}$
Band-filling	InSb, HgCdTe	$10^{-5} - 10^{-2}$	10^{-8}
Quantum-well effect	CdS _x Se _{1-x} doped glass	10^{-8}	10^{-9}
Photorefractive effect	Ferroelectrics (BaTiO ₃ , LiNbO ₃)	$10^{-5} - 10^{-4}$	$10^{-3} - 1$
Conjugate π -electron	poly-diacetylene	$10^{-10} - 10^{-9}$	$< 10^{-12}$
Thermal effect	CdHgTe, organic compound	$10^{-6} - 10^{-5}$	$10^{-1} - 1$

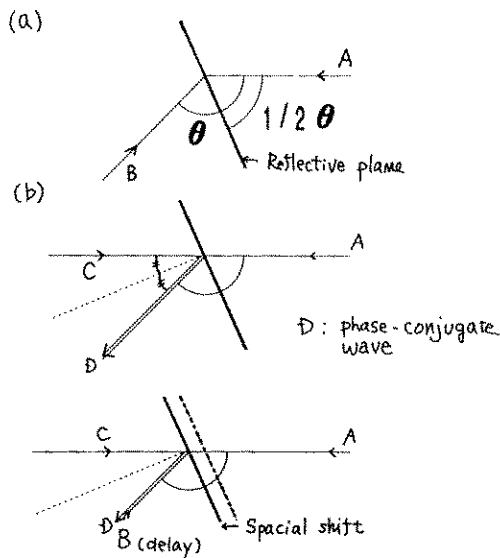


Fig. 5 Schematic illustration of the generation of a phase-conjugated wave by degenerate four wave mixing process.

と、その一部が反射される (Fig. 5 (b))。光波の反射では入射角と反射角は同一となるため、反射光は光波 (B) と完全に同じ方位で逆向きに進行することになる。

さて、光波 B に位相遅れが生じると前節で述べたように干渉縞は B 側に移動する、これは光波 C 側からみると「鏡」が近づいた事になり、この時光波 C の反射は光波 B に位相遅れがなかった場合に比べて早い時期に起こることになる。すなわち、三光波を Fig. 5 に示すように配置すれば、一光波 (B) の位相遅れ (進み) をキャンセルした

第 4 の光波が B と逆方向に放射されるのである。この第 4 の光波こそが位相共役波であり、これを発生させる本法を対向励起縮退 4 光波混合法と呼ぶ。

5. 位相共役波発生媒体と応用

位相共役波の発生は、光非線形分極に起因するが、光非線形分極の要因にも様々な種類がある。Table 1 に光非線形分極の要因と媒質、非線形光学感受率及び応答時間を示す⁵⁾。非線形光学材料は位相共役波発生他に、波長変換、光双安定、光スイッチ素子への応用が試みられているが、目的によって材料への要求条件は異なる。位相共役波発生に対しては、 $\chi^{(3)}$ が大きいこと、使用波長領域で媒質の透過率がある程度高いこと、応答時間が短いことなどが要求される。

位相共役波の応用分野は通信・計測、情報処理、加工・エネルギー分野等、多岐にわたる。特に位相に変調を与える物体を通過した光を位相共役鏡に入射させ、その出射光すなわち位相共役光を再び同じ物体に通すと光波の位相歪が補正される作用は有用である。

位相補正作用の一例として光リソグラフィでの応用を紹介する。光ビームを用いて材料に微細加工を施す技術は半導体分野で昔から利用されている。通常は微細パターンを描いたマスクを通して材料表面に設けた光レジスト上にパターンが転写される。このとき、マスクの微細パターンが光の波長と同程度となると、光はマスクを通過する際に回折によってマスクの裏側に回り込むため

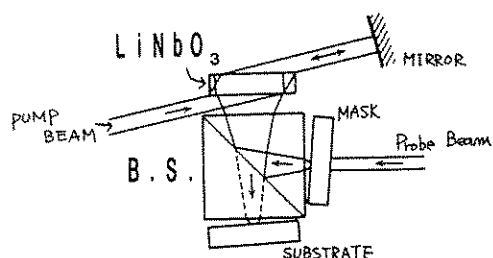


Fig. 6 Application of phase-conjugating mirror for optical lithography.

空間分解能が劣化することになる。

Fig. 6 に位相共役鏡を利用した光リソグラフィの光学系を示す⁶⁾。マスクとレジスト基板が分離されている点に特徴がある。Kr イオンレーザーを光源とし、この光 (波長 $0.413 \mu\text{m}$) をマスクを通して導入する。マスクを透過した光はビームスプリッターで反射され、位相共役鏡 (この場合は LiNbO_3 単結晶) に入射する。ビームスプリッターと位相共役鏡の間における位相歪は光ビームの往復によって相殺され、光レジスト上にマスクに施した微細パターンが忠実に再現されることになる。実際にこの方法で空間分解能 $0.55 \mu\text{m}$ (可視光の波長と同程度) が達成されている。

6. おわりに

位相共役波の発生と応用を概説した。「基礎」的な視点を重視するため、あえて複雑な数式を使用することを避けた。この結果、かなり粗い荒い記述をした部分 (例えば干渉縞と光の反射) が多々あることに留意されたい。詳細は成書を参照されたい^(5,7,8)。

参考文献

- 1) P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich, Phys. Rev. Lett., 7, 118 (1961).
- 2) T. H. Maiman, Nature, 187, 493 (1960).
- 3) D. M. Bloom and G. C. Bjorklund, Appl. Phys. Lett., 31, 592 (1977).
- 4) "New Glass", 3 (4), (1989).
- 5) 左貝潤一著, 「位相共役光学」, 朝倉書店 (1990).
- 6) M. D. Levenson, K. M. Johnson, V. C. Hanchett and K. Chiang, J. Opt. Soc., Am., 71, 737 (1981).
- 7) Y. R. Shen, "The Principles of Nonlinear Optics", Wiley Interscience (1984).
- 8) 鶴田匡夫著, 「応用工学 I・II」, 培風館 (1990).