

レーザー光学 講義テキスト
2013 年度版

服部利明

2013 年 3 月 7 日

序

このテキストは，筑波大学応用理工学類 4 年次対象の講義「レーザー光学」の教材として作成したものである。

このテキストで用いる単位は，基本的には国際単位系である MKSA 単位系に基づくものとし，一部，実用的な単位系も必要に応じて用いる。

2013 年 3 月
服部利明

目次

第 1 章	序論	1
	章末問題	2
第 2 章	レーザーの基礎	4
2.1	レーザー序論	4
2.1.1	レーザー光の特徴	4
2.1.2	レーザーの応用	4
2.2	誘導放出	4
2.2.1	電磁波のモード密度	4
2.2.2	プランクの熱放射式	7
2.2.3	自然放出と誘導放出	10
2.3	レーザーの原理と出力特性	12
2.3.1	反転分布	12
2.3.2	3 準位レーザー	13
2.3.3	4 準位レーザー	14
2.3.4	レーザー共振器	16
2.3.5	発振のしきい値	19
2.3.6	レーザー発振のレート方程式	21
2.3.7	Qスイッチ	22
2.3.8	モード同期	24
	章末問題	26
第 3 章	各種レーザー	27
3.1	レーザーで用いられる光学素子	27
3.1.1	誘電体多層膜	27
3.1.2	プリズム	27
3.1.3	回折格子	27
3.1.4	エタロン	27
3.1.5	複屈折フィルター	28
3.1.6	電気光学変調素子	28
3.1.7	音響光学変調素子	28
3.1.8	ブリュースター面	28
3.2	固体レーザー	29
3.2.1	序	29
3.2.2	ルビーレーザー	30
3.2.3	Nd:YAG レーザー	30
3.2.4	チタンサファイアレーザー	31
3.2.5	ファイバーレーザーとファイバー増幅器	31

3.3	気体レーザー	32
3.3.1	He-Ne レーザー	32
3.3.2	希ガスイオンレーザー	32
3.3.3	エキシマーレーザー	33
3.3.4	炭酸ガスレーザー	33
3.3.5	窒素レーザー	34
3.3.6	金属蒸気レーザー	34
3.3.7	遠赤外レーザー	34
3.4	色素レーザー	34
3.5	半導体レーザー	35
3.6	その他のレーザー	35
第4章	光と物質との相互作用（古典論）	36
4.1	マクスウェル方程式と電磁波	36
4.2	複素数の感受率・誘電率・屈折率	39
4.3	振動磁場	43
4.4	電磁波のエネルギーと強度	43
4.5	吸収の法則	45
4.6	感受率の古典論	46
4.7	スペクトルの広がり	48
	章末問題	50
第5章	光と物質との相互作用（量子論）	51
5.1	定常状態間の遷移	51
5.2	相互作用ハミルトニアン	52
5.3	2 準位系	53
5.4	振動分極	55
5.5	遷移確率	55
第6章	非線形光学	59
6.1	序	59
6.2	非線形分極と非線形光学感受率	59
6.2.1	2 次の非線形分極	60
6.2.2	3 次の非線形分極	61
6.3	非線形光伝搬	63
6.4	2 次の非線形光学効果	65
6.4.1	2 次の非線形光学過程	65
6.4.2	非線形光学係数	66
6.4.3	非調和振動子模型	67
6.4.4	非線形光学係数テンソル	68
6.4.5	非線形光学結晶と対称性	69
6.4.6	第2高調波発生の伝搬方程式	70
6.4.7	位相整合	71
6.4.8	光子描像	72
6.4.9	光パラメトリック過程	73
6.5	3 次の非線形光学効果	73

6.5.1	3 次の非線形光学現象	73
6.5.2	光強度に依存する光学定数	74
6.5.3	光カー効果	75
6.5.4	吸収飽和	77
6.5.5	2 光子吸収	77
6.5.6	過渡的回折格子	78
6.5.7	コヒーレント・ラマン散乱	79
6.6	n 次の非線形光学現象	79
	章末問題	80

索引	81
----	----

第1章 序論

光学 (optics) をその発展段階あるいは取り扱う対象に従って, 幾何光学 (geometric optics), 物理光学 (physical optics), 量子光学 (quantum optics) に分類することができる。幾何光学は光線光学 (ray optics) ともいわれ, 光を光線の集まりとしてとらえ, 光の伝搬を幾何学的な記述で表すものである。幾何光学では, おもに光学系の結像 (imaging), 収差 (aberration) などが扱われる。これは光の波長がゼロの極限で厳密に成り立つ近似理論である。物理光学は波動光学 (wave optics) ともいわれ, 光を波動としてとらえ, 光波の伝搬 (propagation), 干渉 (interference), 回折 (diffraction), 偏光 (polarization), 散乱 (scattering) などを扱う。吸収性媒質における光波の振舞いについても扱うが, 全て巨視的な取り扱いをする。それに対して量子光学は, 微視的すなわち量子力学的な立場で光と物質との相互作用を考え, また光を光子の集まりとしてとらえることにより, 光自体の量子性をも対象とする。あるいは物質と光との間のエネルギーのやり取りをあらわに考えるといってもよい。

量子光学は, 現在非常に広い分野で応用されているレーザー (laser) やその関連技術の基礎であるとともに, 光を用いて物質の性質を調べることをおもな目的とする分光学 (spectroscopy) や光物性などの基礎をなしている。関連する学問分野として, レーザーそのものや光と物質との相互作用の基礎に関する研究を行う量子エレクトロニクス (quantum electronics) や, 光と電子工学とを融合させてこれをレーザー計測, 光通信など, 様々な目的に応用するオプトエレクトロニクス (opto-electronics) などがある。「量子光学」ということばを特に光自体の量子性に関する研究分野に限定して用いることも多いが, ここではより広い意味で用いている。

「レーザー光学」という言葉は, 確立された学問分野を表す言葉ではない。このテキストでは, レーザーの基礎となる上記の量子光学と, レーザーそのものを扱うこととする。

光は, マクスウェル方程式 (Maxwell's equations) で記述される電磁波 (electromagnetic wave) であり, その周波数を ν , 波長を λ とすると, 真空中で

$$\lambda \nu = c \quad (1.1)$$

の関係が成り立つ。ここで c は真空中における電磁波の速さすなわち光速であり, $c = 2.99792458 \times 10^8$ m/s と定義されている。広い電磁波のスペクトルの中で, およそ 380 nm から 780 nm 程度の波長をもつものは人間の目で感知することができ, 可視光 (visible light) と呼ばれている。また, 波長が可視光より短くおよそ 10 nm より長い電磁波を紫外線 (ultraviolet), 波長が可視光より長く 100 μ m より短い電磁波を赤外線 (infrared) という。紫外線よりさらに波長の短い電磁波はエックス線 (x ray) またはガンマ線 (γ ray) と呼ばれ, 赤外線より波長の長い電磁波は, 電波 (radiowave) と呼ばれる。遠赤外線と電波の境界領域に当たるおよそ 0.1 THz から 10 THz の周波数領域 (波長で表すと 30 μ m から 3 mm) の電磁波を, 最近ではテラヘルツ電磁波またはテラヘルツ波 (terahertz wave) と呼ぶことがある。

量子力学によると, 光はこのような波動としての性質に加えて, 粒子としての性質を持っている。これを, 光は波動性と粒子性の二重性 (duality) を持つ, という。光を粒子の集まりとみなしたとき, その粒子を光子 (photon) と呼ぶ。電磁波は古典物理学においてもエネルギーと運動量を持つことが示されるが, 量子力学によるとそれらはとびとびの値をとり, その単位を 1 つの光子と考えることができる。光子 1 個は, エネルギー

$$E = h\nu \quad (1.2)$$

と、運動量

$$p = \frac{h}{\lambda} \quad (1.3)$$

を持つことが示される。ここで h はプランクの定数 (Planck constant) で、およそ $h = 6.63 \times 10^{-34}$ J·s の値を持つ。電磁場そのものを量子力学的に扱うことにより、光子の存在と性質を導出することができる。

光は多くの場合、その波長によって特定されるが、周波数 (frequency) や波数 (wavenumber) によって表すこともできる。波数は波長の逆数であり、単位長さあたりの波の個数を表したものである。波数を $\tilde{\nu}$ とすると、真空中の電磁波においては、

$$\tilde{\nu} = \frac{1}{\lambda} = \frac{\nu}{c} \quad (1.4)$$

のように周波数に比例しているので、上の議論から 1 つの光子のエネルギーにも比例した量である。波数を表すには通例、単位として cm^{-1} を用いる。この単位は単に波長の逆数を表すだけでなく、対応する光子のエネルギーに等しいエネルギー

$$E = hc\tilde{\nu} \quad (1.5)$$

を表すためにも用いられる。分光学では波長をかなりの精度で測定することが古くから可能であったが、波長の値を用いて上式からエネルギーを計算するためにはプランク定数を精度よく知る必要があり、得られるエネルギーの精度がそのとき知られているプランク定数の値の精度によって制限されてしまう。それを避けるため、波長の逆数、すなわち波数の値によってエネルギーを表すことが行われてきたのである。このとき単位 “ cm^{-1} ” は、慣用的に「波数」あるいは “wavenumber” と読むことも多い。より正しくは “reciprocal centimeter” または “inverse centimeter” と読むべきであるとされている。(古くは “K” と書いて「カイザー」(kayser) と読まれることもあったが、現在では勧められないし、国際的には通用しない。)

量子光学では、光 (より一般には電磁波) と物質との相互作用をミクロ (微視的) な立場で扱う。物質のミクロな性質は、量子力学によって記述される。原子・分子や固体結晶などのミクロな状態や運動・変化の理解のために、原子物理学、量子化学、物性物理学などの豊かな学問体系が量子力学を基礎として築かれている。量子光学ではそれらの理論の詳細には立ち入らず、必要に応じてそれらの理論の結果を用いることとなる。

物質の状態は、関係するエネルギーの大きさに応じた階層的構造をなしており、それぞれの状態の変化に関係する電磁波の波長 (または周波数) とおおよその対応関係をもっている。すなわち、可視光や近赤外・近紫外光は外殻電子の状態の変化におもに対応しており、赤外光は分子振動、格子振動や分子の回転に、紫外光は電子状態の変化や化学反応、エックス線は内殻電子の状態、ガンマ線は原子核の状態の変化に、それぞれ関係していると考えることができる。すなわち、それぞれ対応する周波数域の電磁波を吸収することにより物質内にそのような変化が起こったり、逆に物質内のそのような変化に伴って対応する周波数域の電磁波が放出されたりする。

光と物質との相互作用を考える際に、場合によっては物質系を近似的に古典物理学で記述することも行われる。古典物理学による扱いには、量子力学を用いるよりも理論的な扱いが容易であり現象に対する見通しがよいという利点があるので、正しい結果 (近似的に、または厳密に) を与える場合には、よく用いられる。

章末問題

1. 電磁波は周波数または波長によって分類されている。以下のそれぞれに分類される電磁波の、物質との相互作用における特徴を、簡潔に述べよ。

(a) γ 線 , (b) X 線 , (c) 紫外線 , (d) 可視光 , (e) 赤外線 , (f) マイクロ波

2. 可視光は、波長がおよそ 380 nm から 780 nm の範囲の電磁波である。可視光の周波数は、およそその範囲であるか、計算して答えよ。

第2章 レーザーの基礎

2.1 レーザー序論

2.1.1 レーザー光の特徴

レーザー (laser) とは、「放射の誘導放出による光増幅」(light amplification by stimulated emission of radiation) の略から作られた言葉である。

レーザー光の最も大きな特徴は、コヒーレント (coherent) な光であるということである。コヒーレントとは、位相がそろっているという意味であるが、レーザー光は、周波数、波数 (進行方向)、位相のいずれかまたは全てがそろっている波であり、上記の誘導放出による光増幅によって作り出すことができる。どれくらいコヒーレントであるかという度合いをコヒーレンス (coherence) という。「コヒーレンス」の訳語として「可干渉性」ということばも用いられる。コヒーレンスには大きく分けて、空間的なコヒーレンスと時間的なコヒーレンスがある。空間的にコヒーレントな光は波面が滑らかであり、その結果、遠くまであまり広がらずに届いたり (直進性)、小さな場所に集めることができたり (集光性) する。時間的にコヒーレントな光は、電磁場の振動の時間波形が規則的であり、その結果、スペクトル幅が狭い (単色性、狭帯域性) といった特徴を持つ。異なる周波数の電磁波が決まった位相で重ねあわせられると、時間的に短いパルスとなるが、これも、時間的なコヒーレンスの一種とみなすこともできる。レーザーを用いることにより、極限的に短い光パルスを発生することができる。

以上のような特徴によって、レーザーを用いると光のエネルギーを狭い空間領域、時間領域、周波数領域に集中することができる。「レーザー光は強力である」とよくいわれるが、実際には平均的な出力があまり高くなくても、エネルギーが狭い領域に集中することにより、大きな効果が得られるのである。

2.1.2 レーザーの応用

レーザーは、今日非常に広い分野で重要な役割を果たしている。例えば日常的に身の回りにあるものとして、光通信、光記録など、産業における応用として、光計測、レーザー加工など、物質科学における応用として、レーザーアブレーション、レーザー CVD (laser chemical vapor deposition)、基礎科学その他における応用として、分光学、レーザー冷却 (laser cooling)、レーザー核融合 (laser fusion) などがある。

2.2 誘導放出

2.2.1 電磁波のモード密度

レーザー共振器のような有限の大きさの閉じた空間における電磁波は、その空間における固有モードの重ね合わせで表すことができる。これは、有限の長さの弦の振動が弦の固有モードの重ね合わせで表すことができるのと同じである。それぞれのモードは決まった角周波数を持っており、それぞれ独立した振動子のようにみなすことができる。無限に広い自由空間においては無限に多くの電磁波モー

ドが存在し、その角周波数は連続的に分布する。いま初めに1辺の長さが L の立方体を考え、その中に存在する電磁波のモードの数を数えよう。ただし L は電磁波の波長よりは十分大きいとし、最終的には $L \rightarrow \infty$ の極限を考えることによって、単位体積あたりの電磁波のモード密度を求めることができる。

一般にどんな電磁波の電場も平面波の重ねあわせで表せるので、立方体内の電磁波の固有モードの電場を平面波

$$E(\mathbf{r}, t) = A \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)] \quad (2.1)$$

で表そう。ただし、これは複素数による表現であり、この実部が実際の電場を表している。なお、複素表現として指数関数の指数の符号を逆にした

$$E(\mathbf{r}, t) = A \exp[i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] \quad (2.2)$$

を用いても実際の電場そのものは変わらないが、式(2.1)を用いた場合と比べて、あとで述べる複素感受率などの虚部の符号が逆になる。したがって、一連の議論をするときに、複素表現の表し方は一定にしておく必要がある。以下では一貫して、式(2.1)の表現を採用することとする。

波数ベクトル \mathbf{k} および位置 \mathbf{r} は、 x, y, z 軸方向の単位ベクトル $\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}$ を用いて、

$$\mathbf{k} = k_x \hat{x} + k_y \hat{y} + k_z \hat{z} \quad (2.3)$$

$$\mathbf{r} = x \hat{x} + y \hat{y} + z \hat{z} \quad (2.4)$$

のように表すことができる。そうすると、 \mathbf{k} と \mathbf{r} の内積は、

$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} = k_x x + k_y y + k_z z \quad (2.5)$$

と表される。

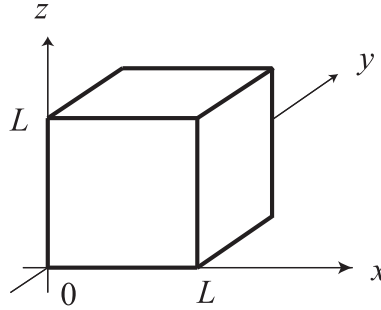


図 2.1: 1 辺の長さ L の立方体

いま、図 2.1 のような 1 辺の長さ L の立方体の中の電磁波のモード数を求めてみよう。立方体の表面において、周期的境界条件を課す。すると、

$$\begin{aligned} E(x=0) &= E(x=L) \\ E(y=0) &= E(y=L) \\ E(z=0) &= E(z=L) \end{aligned} \quad (2.6)$$

であるから、

$$\begin{aligned} \exp(ik_x L) &= 1 \\ \exp(ik_y L) &= 1 \\ \exp(ik_z L) &= 1 \end{aligned} \quad (2.7)$$

が満足される必要がある。そのためには、 k の各成分が、整数 n_x, n_y, n_z を用いて、

$$\begin{aligned} k_x &= 2\pi n_x / L \\ k_y &= 2\pi n_y / L \\ k_z &= 2\pi n_z / L \end{aligned} \quad (2.8)$$

のように表される必要がある。すなわち、三つの整数の組 (n_x, n_y, n_z) に対して波数ベクトル k が一つ定まり、それに対応して電磁波のモードが一つずつ存在することとなる。ただしここまでは、電磁波の偏光について考慮していなかったが、電磁波は直交する二つの方向に偏光の自由度があることを考慮すると、正しくは、整数の組 (n_x, n_y, n_z) に対して二つずつの電磁波モードが存在することになる。波数ベクトルの大きさは、

$$\begin{aligned} k &= (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2)^{1/2} \\ &= \frac{2\pi}{L} (n_x^2 + n_y^2 + n_z^2)^{1/2} \end{aligned} \quad (2.9)$$

と表される。いま電磁波の波長を λ とすると、

$$\lambda = \frac{2\pi}{k} \quad (2.10)$$

より、

$$n_x^2 + n_y^2 + n_z^2 = \left(\frac{L}{\lambda}\right)^2 \quad (2.11)$$

が得られる。初めに、立方体の1辺の長さ L は波長よりも十分に長いと仮定したので、

$$n_x^2 + n_y^2 + n_z^2 \gg 1 \quad (2.12)$$

であることが分かる。波数と電磁波の角周波数 ω とは、

$$\omega = kc \quad (2.13)$$

の関係にある。ただし、ここで c は真空中の光の速度である。これを用いると、

$$\omega^2 = \left(\frac{2\pi c}{L}\right)^2 (n_x^2 + n_y^2 + n_z^2) \quad (2.14)$$

の関係が得られる。これより、角周波数が0から ω までの電磁波モードの総数は、

$$n_x^2 + n_y^2 + n_z^2 < \left(\frac{L\omega}{2\pi c}\right)^2 \quad (2.15)$$

を満たす整数の組 (n_x, n_y, n_z) の数の2倍に等しいことが分かる。一般に $n \gg 1$ のとき、

$$n_x^2 + n_y^2 + n_z^2 < n^2 \quad (2.16)$$

を満たす整数 (n_x, n_y, n_z) の組の数は、半径 n の球の体積 $4\pi n^3/3$ に等しい。したがって求める電磁波モードの数は、

$$\frac{4\pi}{3} \left(\frac{L\omega}{2\pi c}\right)^3 \times 2 = \frac{\omega^3 L^3}{3\pi^2 c^3} \quad (2.17)$$

と得られる。角周波数 ω から $\omega + d\omega$ の間にあるモードの数は、これの ω に関する微分を取って、

$$\frac{\omega^2 L^3}{\pi^2 c^3} d\omega \quad (2.18)$$

となる。立方体の体積は L^3 なので、上のモード数は体積に比例しており、体積・角周波数あたりのモード密度 $\mathcal{D}(\omega)$ は、

$$\mathcal{D}(\omega)d\omega = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3} d\omega \quad (2.19)$$

と求められる。また、角周波数 ω の代わりに周波数 $\nu = \omega/2\pi$ を用いると、周波数あたりのモード密度 $\mathcal{D}_\nu(\nu)$ は、

$$\mathcal{D}(\omega)d\omega = \mathcal{D}_\nu(\nu)d\nu \quad (2.20)$$

より、

$$\mathcal{D}_\nu(\nu)d\nu = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} d\nu \quad (2.21)$$

と表される。

2.2.2 プランクの熱放射式

電磁波のモードは、それぞれ別々の振動子とみなすことができる。熱平衡状態における各モードのエネルギーの分布を導出しよう。電磁波の熱平衡状態は、黒体すなわち全ての周波数の電磁波を吸収・放出する物質によって囲まれた空間において実現するので、それを黒体放射（または黒体輻射）という。

まず、量子力学的な効果を考えない場合について検討しよう。統計力学によると、絶対温度 T の熱平衡状態において、各モードのエネルギーが W から $W + dW$ にある確率は、

$$p(W)dW = \frac{1}{k_B T} \exp(-W/k_B T) dW \quad (2.22)$$

である。ここで k_B はボルツマン定数（Boltzmann constant）であり、およそ $k_B = 1.38 \times 10^{-23}$ J/K の値を持つ。各モードが持つ平均エネルギーは、

$$\langle W \rangle = \int_0^\infty W p(W) dW = k_B T \quad (2.23)$$

のように等しくなり、これはエネルギーの等分配則（principle of equipartition）と呼ばれる。角周波数 ω から $\omega + d\omega$ の間の電磁波モードがもつ体積あたりのエネルギー $U(\omega)d\omega$ は、式 (2.19) で与えられるモード密度に各モードが持つ平均エネルギーをかけたものであるから、これは、

$$U(\omega)d\omega = \mathcal{D}(\omega)k_B T d\omega = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3} k_B T d\omega \quad (2.24)$$

のように求められる。これがレイリー・ジーンズ（Rayleigh-Jeans）の公式である。この式は、低周波数の領域では観測事実を説明できた。しかしこの式によると、電磁波のエネルギーは ω が大きくなるにつれて増大し、 ω に関して積分すると全エネルギーは発散してしまう。現実においては、物体と電磁波の熱平衡状態において電磁波の持つエネルギーは物質のエネルギーより小さく、また電磁波のエネルギー密度は、温度に応じて、ある角周波数で最大になることが観測されていた。すなわち上記のような考察では、経験的事実を説明できなかった。

プランク（M. Planck）は、量子仮説（quantum hypothesis）を導入することにより、黒体放射のスペクトルを説明することに成功した。いま、各電磁波モードはその角周波数 ω あるいは周波数 ν に応じてとびとびのエネルギー

$$W = n\hbar\omega = nh\nu \quad (n = 0, 1, 2, \dots) \quad (2.25)$$

しかとらないと仮定する。ただし $\hbar \equiv h/2\pi$ である。こうすると、電磁波を粒子の集まりとみなすことができる。つまり、あるモードのエネルギーが $W = n\hbar\omega$ である状態を、そのモードにエネルギー $\hbar\omega$

の粒子が n 個ある状態とみなすことが可能である。そう考えたときの電磁波の粒子を光子 (photon) という。このように仮定すると、角周波数 ω に光子が n 個存在する確率 $p(n)$ は

$$p(n) \propto \exp(-n\hbar\omega/k_B T) \quad (2.26)$$

であるので、このモードの平均エネルギー W_{th} は、

$$W_{\text{th}} = \frac{\sum_{n=0}^{\infty} n\hbar\omega e^{-n\hbar\omega/k_B T}}{\sum_{n=0}^{\infty} e^{-n\hbar\omega/k_B T}} \quad (2.27)$$

によって与えられる。ここで分母は、全確率が 1 になるようにするための規格化因子である。いま

$$r \equiv e^{-\hbar\omega/k_B T} \quad (2.28)$$

とくと、式 (2.27) の分母は、無限等比級数の公式を用いて

$$\sum_{n=0}^{\infty} r^n = \frac{1}{1-r} \quad (2.29)$$

となる。また分子は、

$$\hbar\omega \sum_{n=0}^{\infty} nr^n = \hbar\omega r \frac{\partial}{\partial r} \sum_{n=0}^{\infty} r^n = \hbar\omega r \frac{1}{(1-r)^2} \quad (2.30)$$

のように求めることができる。したがって、

$$\begin{aligned} W_{\text{th}} &= \hbar\omega \frac{r}{1-r} = \hbar\omega \frac{1}{\frac{1}{r} - 1} \\ &= \frac{\hbar\omega}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} \end{aligned} \quad (2.31)$$

が得られる。これはボーズ・アインシュタイン分布 (Bose-Einstein distribution) と呼ばれるエネルギー分布である。この分布は、角周波数が小さい領域 ($\hbar\omega \ll k_B T$) においては、式 (2.23) の古典的な分布と一致するが、高周波数において急激に減少する。この結果を用いると、角周波数 ω と $\omega + d\omega$ の間の全ての電磁波モードが熱平衡状態において持つエネルギー密度は、上式にモード密度 $\mathcal{D}(\omega)d\omega$ をかけて、

$$U(\omega)d\omega = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3} \frac{\hbar\omega d\omega}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} \quad (2.32)$$

と求められる。この式は、周波数が小さい $h\nu \ll k_B T$ の極限においてレイリー・ジーンズの式 (2.24) に一致することが確かめられる。図 2.2 に、レイリー・ジーンズの式とプランクの式による、熱平衡状態における電磁波のエネルギー分布の比較を示した。非常に低周波数でのみ、二つの結果は一致している。

式 (2.32) を周波数 ν から $\nu + d\nu$ の間のエネルギー密度になおすと、

$$U_\nu(\nu)d\nu = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} \frac{h\nu d\nu}{e^{h\nu/k_B T} - 1} \quad (2.33)$$

となる。また、波長 $\lambda + d\lambda$ から $d\lambda$ の間のエネルギー密度の形で表すと、

$$U_\lambda(\lambda)d\lambda = \frac{8\pi hc}{\lambda^5} \frac{d\lambda}{e^{hc/\lambda k_B T} - 1} \quad (2.34)$$

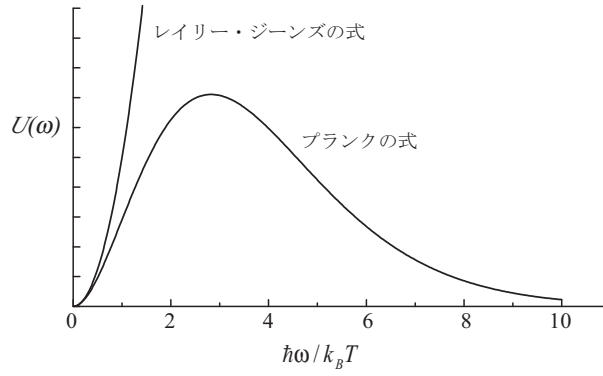


図 2.2: 熱平衡状態における電磁波のエネルギー分布

と表される。これらをプランクの熱放射式といい、黒体放射のスペクトルを正しく導出したものである。式 (2.32) を 0 から ∞ まで積分すると、絶対温度 T における黒体放射の単位体積あたりの全エネルギー密度が

$$I = \frac{\hbar}{\pi^2 c^3} \int_0^\infty \frac{\omega^3 d\omega}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} = \frac{\pi^2 k_B^4}{15 c^3 \hbar^3} T^4 \quad (2.35)$$

のように得られる。ここで、積分公式

$$\int_0^\infty \frac{x^3}{e^x - 1} dx = \frac{\pi^4}{15} \quad (2.36)$$

を用いた。このように黒体放射の全エネルギーが T^4 に比例することは、シュテファン・ボルツマンの放射法則 (Stefan-Boltzmann law of radiation) と呼ばれる。

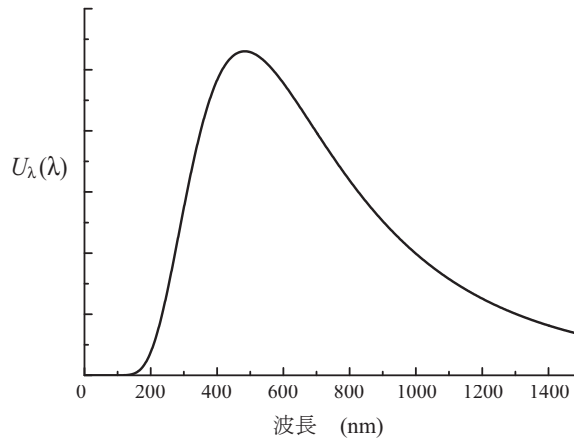


図 2.3: 6000K における、波長に対する電磁波のエネルギー分布

いま、式 (2.34) を用いて温度 T における黒体放射の波長分布のピーク波長について調べてみよう。ピーク波長 λ_m は、

$$\frac{d}{d\lambda} U_\lambda(\lambda) = 0 \quad (2.37)$$

を満たす。これを計算すると、式

$$1 - \frac{1}{5} \frac{hc}{\lambda_m k_B T} = \exp\left(-\frac{hc}{\lambda_m k_B T}\right) \quad (2.38)$$

が得られる。いま

$$x = \frac{hc}{\lambda_m k_B T} \quad (2.39)$$

とおくと、方程式

$$1 - \frac{x}{5} = \exp(-x) \quad (2.40)$$

は $x = 0$ とおよそ $x = 4.965$ に解を持つ。このうち $x = 4.965$ がピーク波長を与える。これより、黒体放射スペクトルのピーク波長は温度に反比例し、

$$\lambda_m = \frac{hc}{4.965 k_B T} = \frac{2.90 \text{ mm} \cdot \text{K}}{T} \quad (2.41)$$

で与えられる。温度 $T = 300 \text{ K}$ では $\lambda_m = 9.66 \mu\text{m}$ となり、これは赤外線である。図 2.3 に示すように、太陽表面の温度 6000 K の黒体放射スペクトルのピーク波長は $\lambda_m = 483 \text{ nm}$ の可視光であり、太陽光スペクトルのピーク波長にほぼ一致する。

2.2.3 自然放出と誘導放出

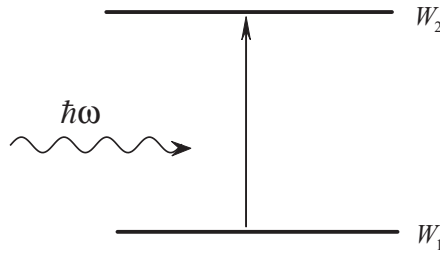


図 2.4: 2 準位系における光の吸収

二つの準位からなる物質系（2 準位系）を考える。エネルギーの低い準位（下準位）を準位 1，高い準位（上準位）を準位 2 とし、それらのエネルギーを W_1 , W_2 とする。図 2.4 に示すように、系が下準位にいるときに 2 準位のエネルギー差に共鳴した角周波数 $\omega = (W_2 - W_1)/\hbar$ の光が系に入射すると、入射光のエネルギーによって系が下準位から上準位にあげられる（励起される）ことはよく知られている。これを、光の吸収（absorption）という。光の吸収過程では、入射光のエネルギーが減少し、同時にそれに対応して物質系はエネルギーの高い状態に遷移する。入射光エネルギーの減少分は物質系が得たエネルギー $\hbar\omega$ に等しいはずであるから、吸収過程においてエネルギー $\hbar\omega$ を持つ光子が一つ消滅したと考えることができる。実際に電磁場を量子化した取り扱いにより、この考えが正しいことが示される。吸収過程において下準位にある系が上準位に遷移する速さは、単位時間あたりに遷移する確率を用いて表すことができる。一般に、単位時間あたりの遷移や変化の割合をレート（rate）あるいは速度と呼んでいる。したがって、吸収遷移の速さを吸収遷移レートによって表すこととする。吸収遷移は物質系に入射する光によって引き起こされるので、吸収遷移レートは入射光の強さに比例すると考えることができる。つまり、角周波数 ω の光のエネルギー密度を $U(\omega)$ とすると、準位 1 から準位 2 への吸収遷移のレートは

$$B_{12}U(\omega) \quad (2.42)$$

のように表される。

一方、図 2.5 のように、高いエネルギー状態にある物質が自発的に電磁波を放出して低いエネルギー状態に移る過程が存在することも、観測によって知られている。この場合、放出された電磁波の角周

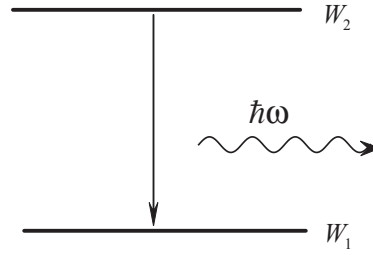


図 2.5: 2 準位系における光の放出

波数 ω も, $\hbar\omega = W_2 - W_1$ を満たす。この場合は, 物質系のエネルギーが $\hbar\omega$ だけ減少し, それに応じて, 電磁波のエネルギーは $\hbar\omega$ だけ増加するはずなので, 光子 1 個が生成されたと考えることができる。この過程を光の放出 (emission) という。光の放出は高いエネルギー状態にある系において自発的に起きるものであるから, その速度は, 入射光強度によらない定数 A で表されると考えることができるだろう。

このような仮定のもとで, いま, このように物質と電磁波が互いに相互作用している系が, 全体として温度 T の熱平衡状態にある場合を考える。上準位にある物質系の数を N_2 , 下準位にある数を N_1 とすると, 熱平衡状態では

$$N_2 = N_1 \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \quad (2.43)$$

が成り立つ。また熱平衡状態では, 光の吸収によって下準位から上準位に上げられる物質系の数と光の放出によって上準位から下準位に落ちる物質系の数とは等しいはずであるから,

$$N_1 B_{12} U(\omega) = N_2 A \quad (2.44)$$

が成り立つはずである。この二つの式が同時に成り立つためには,

$$U(\omega) = \frac{A}{B_{12}} \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \quad (2.45)$$

でなければいけない。ところが, 電磁波自体も熱平衡状態にあるので, $U(\omega)$ はプランクの熱放射式で与えられるはずであり, 上式はこれと矛盾する。

プランクの式では, 高温では $U(\omega)$ は温度に比例して増加するのに対して, 式 (2.45) によれば一定の値で頭打ちになる。この困難を回避するために, 光の放出過程の速度が入射光の強度に応じて増加すると考えることにする。つまり, 放出のレートが,

$$A + B_{21} U(\omega) \quad (2.46)$$

のように定数 A と光のエネルギー密度に比例する寄与との和で表されると考える。すると, 熱平衡状態において上と同様な考察により,

$$N_1 B_{12} U(\omega) = N_2 [A + B_{21} U(\omega)] \quad (2.47)$$

が成り立つ。これと, 式 (2.43) から,

$$U(\omega) = \frac{A}{B_{12} e^{\hbar\omega/k_B T} - B_{21}} \quad (2.48)$$

が得られる。この式で, 温度 T が無限大のときに $U(\omega)$ が無限大になるためには,

$$B_{12} = B_{21} \quad (2.49)$$

でなければならない。そこで，

$$B \equiv B_{12} = B_{21} \quad (2.50)$$

とおく。また，低周波数の極限でレイリー・ジーンズの式 (2.24) に一致するためには，

$$\boxed{\frac{A}{B} = \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3}} \quad (2.51)$$

でなければならない。これらの条件を用いると，式 (2.48) からプランクの式 (2.32) が得られる。すなわち，このような考え方が正しいことが示された。

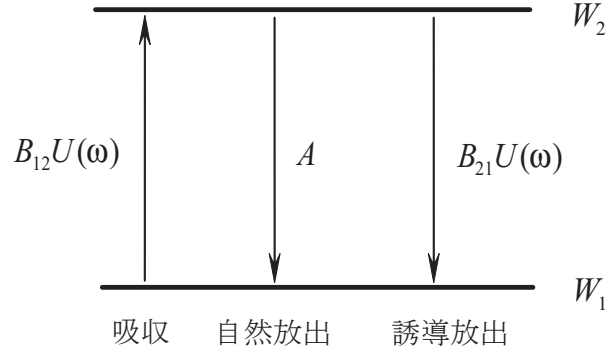


図 2.6: 2 準位系における光の吸収，自然放出，誘導放出の遷移レート

上の考察では，暗黙のうちに上準位，下準位とも縮退がないと仮定していた。準位 1，準位 2 の縮重度が g_1, g_2 である場合は，式 (2.43) は

$$N_2 = \frac{g_2}{g_1} N_1 \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \quad (2.52)$$

となるので，

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21} \quad (2.53)$$

$$\frac{A}{B_{12}} = \frac{g_1}{g_2} \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3} \quad (2.54)$$

が導かれる。

以上の考察から，光の放出レートは図 2.6 に示すように，入射光強度によらない項と入射光強度に比例する項からなることが分かった。そこで，それぞれの項が別の過程を表すと考え，前者を自然放出 (spontaneous emission)，後者を誘導放出 (stimulated emission) と呼ぶ。上の議論から，上準位にある系からの誘導放出の速度は下準位にある系からの吸収の速度と等しい。またここに現れる係数 A ， B をアインシュタインの A 係数， B 係数と呼ぶ。アインシュタインの A 係数と B 係数の間には，式 (2.51) の関係が成り立つ。

2.3 レーザーの原理と出力特性

2.3.1 反転分布

いま 2 準位系を考え，下準位を準位 1，上準位を準位 2 とし，それぞれの準位が持つエネルギーを W_1, W_2 とする。準位 1，準位 2 に存在する系の数をそれぞれ N_1, N_2 としたとき，光の吸収によって

単位時間あたりに下準位から上準位に遷移する系の数は

$$N_1 B U(\omega) \quad (2.55)$$

であり、逆に誘導放出によって単位時間あたりに上準位から下準位に遷移する系の数は

$$N_2 B U(\omega) \quad (2.56)$$

である。光のエネルギーはこれらのそれぞれに比例して減少したり増加したりするので、全体としては、 $N_1 > N_2$ のときには吸収の効果が誘導放出の効果を上回り、光の強度は減衰する。それに対して、 $N_1 < N_2$ のときには誘導放出の効果が吸収の効果を上回り、その結果光の増幅が起こる。これがレーザーにおける誘導放出による光増幅の原理である。このように上準位にある系の数が下準位にある系の数より多い状態を、反転分布 (population inversion または inverted population) という。一般に、温度 T の熱平衡状態では式 (2.43) が成り立つので、反転分布を生じるためには温度 T が負でなければならない。実際には負の温度の状態は存在しないが、このことより反転分布の起きている状態のことを負温度状態と呼ぶことがある。

反転分布状態は熱平衡状態ではありえないが、エネルギーの流れのある非熱平衡状態によって実現することができる。レーザーに用いる系においては、多くの場合反転分布はポンピング (pumping) によって生成される。ポンピングとは、何らかの方法によって系に外部からエネルギーをつぎ込み、下準位の状態にある系を上準位に上げてやることである。具体的な方法としては、光のエネルギーを用いる光ポンピングのほか、放電ポンピング、電流ポンピングなどが用いられる。

2.3.2 3 準位レーザー

どのようなポンピング法によっても、ポンピングの過程に対して逆過程が必ず存在するので、純粋な 2 準位系では反転分布を生成することはできない。ただし、あとで見るようなコヒーレントな過程による場合は除外することとする。したがって、反転分布を生成するためには三つ以上の準位が反転分布形成に関与する必要がある。そこでまず、最も簡単な 3 準位系について考察する。

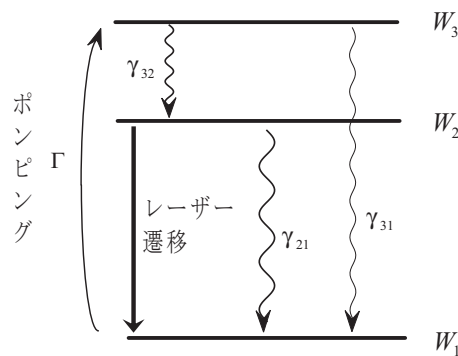


図 2.7: 3 準位レーザーの準位図

図 2.7 のように準位 n ($n = 1, 2, 3$) からなる 3 準位系を考え、各準位のエネルギーを W_n とおく。ただし $W_1 < W_2 < W_3$ とする。準位 1 から準位 3 へ何らかの方法でポンピングが行われているとする。そのレート (pumping rate) を Γ とする。また、準位 2, 準位 3 からは、光が存在しないときにも緩和によって、あるレートで下の準位に遷移していく。特に準位 3 から準位 2 へは非常に速い緩和が起こり、その結果ポンピングによって結果的に準位 2 に多くの系を励起することができるとする。その数が十分

多くなれば準位2と準位1との間に反転分布が生じ、この間の遷移に共鳴する光に対して増幅が実現できることが予想できる。ポンピングと緩和の効果を合わせて、各準位に存在する系の数 N_n ($n = 1, 2, 3$) の時間変化に対する方程式

$$\frac{dN_1}{dt} = -\Gamma N_1 + \gamma_{21}N_2 + \gamma_{31}N_3 \quad (2.57)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\gamma_{21}N_2 + \gamma_{32}N_3 \quad (2.58)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \Gamma N_1 - (\gamma_{31} + \gamma_{32})N_3 \quad (2.59)$$

を書くことができる。このような方程式をレート方程式 (rate equation) という。ここで、 γ_{mn} は、準位 m から準位 n への緩和レートである。またここでは、光によって引き起こされる吸収や誘導放出による遷移は考えないことにする。上の三つの式を足し合わせると、全系の数 $N \equiv N_1 + N_2 + N_3$ に対して

$$\frac{dN}{dt} = 0 \quad (2.60)$$

が成り立つことが確認できる。いま系が定常状態にある場合を考えると、

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{dN_2}{dt} = \frac{dN_3}{dt} = 0 \quad (2.61)$$

より、

$$N_1 = \frac{\gamma_{21}(\gamma_{31} + \gamma_{32})}{\gamma_{21}(\gamma_{31} + \gamma_{32}) + (\gamma_{32} + \gamma_{21})\Gamma} N \quad (2.62)$$

$$N_2 = \frac{\gamma_{32}\Gamma}{\gamma_{21}(\gamma_{31} + \gamma_{32}) + (\gamma_{32} + \gamma_{21})\Gamma} N \quad (2.63)$$

が得られる。これより、反転分布 ($N_2 > N_1$) ができるためには、

$$\Gamma > \gamma_{21} \left(1 + \frac{\gamma_{31}}{\gamma_{32}} \right) \quad (2.64)$$

が成り立てばよいことが分かる。特に簡単のために $\gamma_{32} \gg \gamma_{31}$ とすると、

$$\Gamma > \gamma_{21} \quad (2.65)$$

が得られる。すなわち、基底状態をレーザー遷移の下準位とする3準位系においては、レーザー準位間の緩和レートよりもポンピングのレートが上回れば反転分布が形成され、光の増幅が達成される。

2.3.3 4準位レーザー

図2.8のような4準位系を用いると、3準位系よりも容易に反転分布を形成することができる。4準位系の準位 n ($n = 0, 1, 2, 3$) のエネルギーを W_n ($n = 0, 1, 2, 3$) とする。ただし $W_0 < W_1 < W_2 < W_3$ とする。準位0から準位3にポンピングを行い、準位3から準位2への速い緩和によって準位2に大きな分布を溜め込むこととする。そのとき準位2と準位1との間に反転分布を形成し、この間で光の増幅を行うことを目指す。この場合、ポンピングのない場合には準位1に全く系が分布していないとすると、非常に弱いポンピングでも反転分布が形成されることがわかる。すなわち、反転分布を作るためには4準位系が3準位系に比べて圧倒的に有利である。さらに定量的に調べるため、ポンピングのない場合にも熱平衡状態において準位1にわずかながら有限の分布がある場合を考える。この場合に、

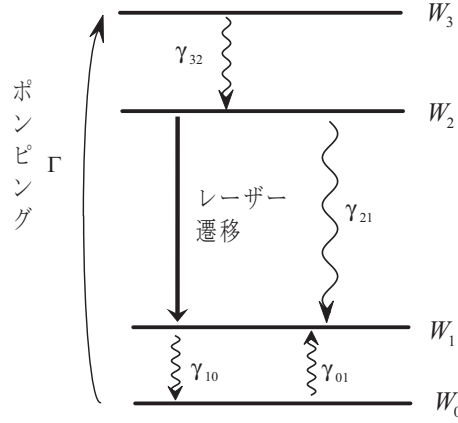


図 2.8: 4 準位レーザーの準位図

各準位の分布 N_n ($n = 0, 1, 2, 3$) に対するレート方程式は以下のように表される。

$$\frac{dN_1}{dt} = \gamma_{01}N_0 - \gamma_{10}N_1 + \gamma_{21}N_2 + \gamma_{31}N_3 \quad (2.66)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\gamma_2N_2 + \gamma_{32}N_3 \quad (2.67)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \Gamma N_0 - \gamma_3N_3 \quad (2.68)$$

$$\frac{dN_0}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} - \frac{dN_2}{dt} - \frac{dN_3}{dt} \quad (2.69)$$

ただし, γ_{mn} は準位 m から準位 n への緩和レートであり,

$$\gamma_2 \equiv \gamma_{20} + \gamma_{21} \quad (2.70)$$

$$\gamma_3 \equiv \gamma_{30} + \gamma_{31} + \gamma_{32} \quad (2.71)$$

とした。また, 熱平衡状態において準位 1 に有限の分布が存在することに対応して, 準位 0 から準位 1 への遷移レート γ_{01} を導入している。ただし熱平衡状態での分布から,

$$\gamma_{01} = \gamma_{10} \exp[-(E_1 - E_0)/k_B T] \quad (2.72)$$

が成り立つ。定常状態における解は,

$$N_1 = \left(\frac{\gamma_{01}}{\gamma_{10}} + \frac{\gamma_{21}\gamma_{32} + \gamma_2\gamma_{31}}{\gamma_{10}\gamma_2\gamma_3} \Gamma \right) N_0 \quad (2.73)$$

$$N_2 = \frac{\gamma_{32}\Gamma}{\gamma_2\gamma_3} N_0 \quad (2.74)$$

$$N_3 = \frac{\Gamma}{\gamma_3} N_0 \quad (2.75)$$

と得られる。反転分布 $N_2 > N_1$ が成り立つためには,

$$\Gamma > \frac{\gamma_{01}\gamma_2\gamma_3}{\gamma_{32}\gamma_{10} - \gamma_{21}\gamma_{32} - \gamma_2\gamma_{31}} \quad (2.76)$$

であればよい。これからまず, γ_{01} を考慮しなければ (すなわち, 熱平衡状態における準位 1 の分布を 0 とすると,) 無限に小さいポンピングでも反転分布が形成されることがわかる。次に簡単のために,

条件 $\gamma_{10} \gg \gamma_2$ が成り立つとする。すなわち、レーザー遷移の上準位からの緩和が遅く、それに対して下準位の分布は十分速くなくなると考える。すると上の条件は、

$$\Gamma > \gamma_2 \exp[-(W_1 - W_0)/k_B T] \quad (2.77)$$

のようになる。したがってこのような4準位系においては、 $W_1 - W_0 \gg k_B T$ であれば著しく弱いポンピングで反転分布が達成できることがわかる。

実際のレーザー媒質のエネルギー準位の構造は通常もっと複雑であるが、レーザー遷移の下準位が基底準位か、それとも基底準位から $k_B T$ 以上エネルギーの高い準位であるかによって、3準位系または4準位系としてとらえることができ、それぞれ3準位レーザー、4準位レーザーと呼ばれる。

2.3.4 レーザー共振器

多くのレーザーにおいては、光の増幅を担うレーザー媒質を光の共振器の中に配置して、光がその中を何度も往復するような構造をとっている。それをレーザー共振器 (laser cavity) という。ここでは、代表的な構造としてファブリー・ペロー (Fabry-Perot) 共振器について考察する。

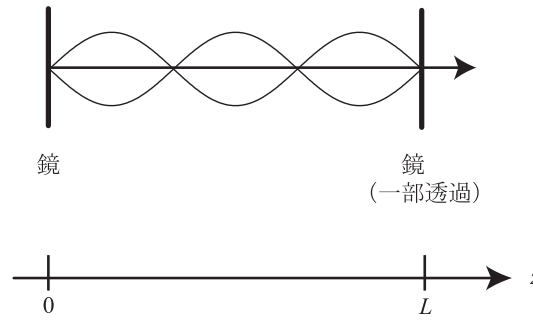


図 2.9: ファブリー・ペロー共振器の概念図

ファブリー・ペロー共振器は、図 2.9 のように平行に対面した1対の反射鏡からなる。反射鏡の間隔を L とする。実際のレーザーでは、レーザー光を出力として取り出すために一方の反射鏡は一部（例えば1%程度）の光を透過するようにしてあるが、まずは簡単のために、どちらの反射鏡の反射率も100%であるとする。反射鏡の面に垂直な方向を z 軸にとることとする。すると、 z 方向に進む光は2枚の反射鏡の間を何度も往復して、増幅を繰り返しながらその強度を増していくことが期待される。それに対してその他の方向に進む光は、いずれ反射鏡から外れてしまうので、レーザー光として利用できないものと思われる。したがって、レーザー光としては z 方向に進む光のみを考えることにする。共振器内の光は、いろいろな波数の成分の重ねあわせで表すことができる。そこで、いまそのうちの特定の波数成分について考える。するとその電場は、

$$E(z, t) = A \exp(ikz - i\omega t) + B \exp(-ikz - i\omega t) \quad (2.78)$$

と表される。ここで、第1項が $+z$ 方向、第2項が $-z$ 方向に進む波を表す。反射鏡表面では光の電場は0となるので、境界条件として

$$E(z=0) = 0 \quad (2.79)$$

$$E(z=L) = 0 \quad (2.80)$$

が得られる。すなわち，両端の鏡の表面に光の電場の節が来る。第 1 式から $B = -A$ が得られ，それを第 2 式に代入すると，

$$A \sin(kL) = 0 \quad (2.81)$$

が得られる。これを満足するためには，

$$kL = n\pi \quad (n = 1, 2, 3, \dots) \quad (2.82)$$

でなければならない。そこで

$$k_n = \frac{n\pi}{L} \quad (n = 1, 2, 3, \dots) \quad (2.83)$$

とくと，この波数 k_n に対応する電場は

$$E_n(z, t) = A \sin(k_n z) \exp(-i\omega t) \quad (2.84)$$

となる。共振器内の光の電場は，一般に $E_n(z, t)$ ($n = 1, 2, 3, \dots$) の重ねあわせで表すことができる。このそれぞれを，ファブリー・ペロー共振器の共振器モードという。すなわち n 番目のモードは，上で与えられるような波数 k_n と電場 $E_n(z, t)$ を持つ。また，その波長は

$$\lambda_n = \frac{2L}{n} \quad (2.85)$$

であり，角周波数は

$$\omega_n = ck_n = \frac{n\pi c}{L} \quad (2.86)$$

と表される。各共振器モードの角周波数の間隔は

$$\Delta\omega = \omega_{n+1} - \omega_n = \frac{\pi c}{L} \quad (2.87)$$

と一定であり，図 2.10 のように角周波数に対して共振器モードは一定間隔 ($\Delta\omega$ ごと) に存在することが分かる。その角周波数を持った電磁波のみが共振器内に存在できる。

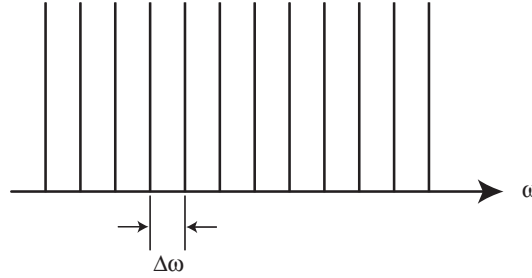


図 2.10: ファブリー・ペロー共振器の共振器モード

ここまでの議論では，ファブリー・ペロー共振器を構成する鏡は，無限に大きいとし，また，共振器内の光は平面波であると仮定してきた。実際には鏡の大きさが有限であるために，光の横方向の広がりについても考慮しなければならない。光の横方向の分布の様子を横モード (transverse mode) という。これまでに述べた共振器モードは，それと区別して，縦モード (longitudinal mode) と呼ばれる。

図 2.11(a) に示されるような，有限な大きさの平面鏡からなるファブリー・ペロー共振器では，光は回折によって次第に広がってしまうので，安定な横モードが形成できない。そこで，多くのレーザーでは，両方または片方の鏡に凹面鏡を用いることにより，光を横方向にも閉じ込めている。うまく共振器の条件をそろえると，節のないきれいな強度分布を持つ横モードでレーザー発振させることができる。そのようなモードを TEM_{00} モードという。いくつかの横モードの強度分布を例を図 2.12 に示した。

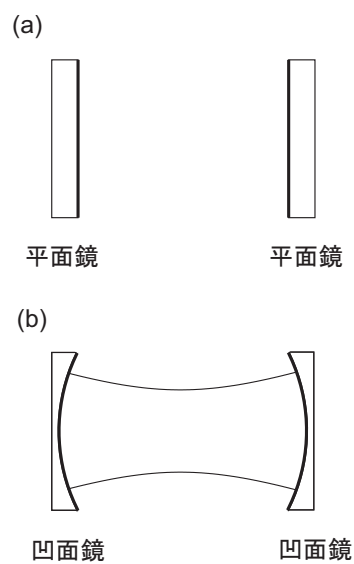


図 2.11: レーザー共振器の構成。(a) 平面鏡により構成されるファブリー・ペロー共振器。(b) 2 枚の凹面鏡により構成されるレーザー共振器と、共振器内の光ビームの形状。

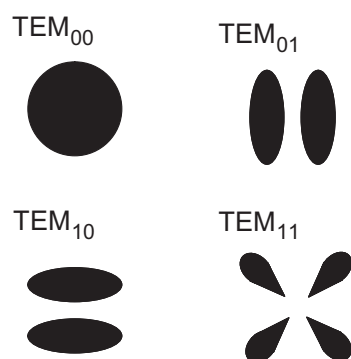


図 2.12: いくつかの横モードの光強度分布。強度の大きい場所を黒で示してある。

2.3.5 発振のしきい値

次に、レーザー発振 (laser oscillation) が起きるための条件について考えてみよう。一般に発振とは、外部から信号を入力しない状態で特定の振動を発生することであり、増幅器の出力が入力に十分な強さで帰還されるときに起きる現象である。

ここまでは共振器内には何も存在しないものと考えていたが、実際のレーザーでは光を増幅する利得媒質 (gain medium) が必ず存在する。利得媒質はレーザー媒質 (laser medium) とも呼ばれ、誘導放出によって光を増幅する媒質である。

いま、長さ L のファブリー・ペロー共振器の中に長さ l の利得媒質を置いた場合を考える。共振器の反射鏡の反射率は、それぞれ R_1, R_2 とする。多くの場合、一方の反射鏡の反射率は 100% に近くし他方の反射鏡の反射率を 80% から 99% 程度にして、そこからレーザー出力を取り出す。次に、レーザー媒質の利得係数を G とおく。これは、例えば右向きに進む光の強度を $I_1(z)$ とすると、レーザー媒質中において

$$\frac{d}{dz}I_1(z) = GI_1(z) \quad (2.88)$$

が成り立つという意味である。すると、この式から

$$I_1(z) = I_1(0) \exp(Gz) \quad (2.89)$$

となるので、レーザー媒質を光が 1 回通過するごとに、その強度は $\exp(Gl)$ 倍になる。共振器内のある 1 点からスタートして光が共振器内を 1 往復してもとに戻ったときに、その強度がもとの強度を超えるときに、レーザー発振が起こる。ファブリー・ペロー共振器では、光は 1 往復の間に 2 枚の反射鏡で一回ずつ反射し、レーザー媒質による増幅を 2 回受けるので、もとの光の強度に対する 1 往復後の光の強度の比が 1 を超える

$$R_1 R_2 \exp(2Gl) > 1 \quad (2.90)$$

が、レーザー発振が起きるための条件である。利得係数に対する条件としては、

$$G > -\frac{1}{2l} \ln(R_1 R_2) \quad (2.91)$$

となる。多くの場合 R_1, R_2 はともに 1 に近いので、反射鏡の透過率

$$T_1 = 1 - R_1 \quad (2.92)$$

$$T_2 = 1 - R_2 \quad (2.93)$$

は、どちらも 1 に比べて小さい量になる。自然対数は

$$\ln(1 - x) \cong -x \quad (2.94)$$

のようにテイラー展開できる。これをもちいて式 (2.91) を T_1, T_2 について展開することにより、

$$G > \frac{1}{2l}(T_1 + T_2) \quad (2.95)$$

を得る。

このようにして得られたレーザー発振のための条件は、利得媒質による光の増幅の効果が共振器内の光の損失に打ち勝つ条件に相当する。上の例では、損失は 2 枚の反射鏡の反射率が 100% より小さいことのみによって生じていた。実際のレーザー共振器では、共振器内のいろいろな光学素子による光の反射、散乱、吸収や、光の回折などによる損失が存在する。レーザー発振を起こすためには、利得の効果がそれら全ての損失の効果を上回らなければならない。いずれにしても、そのような条件を満

たすために必要な最低の利得の大きさを、レーザー発振のための利得係数のしきい値 (threshold) という。上のモデルでは、しきい値を G_{th} として

$$G_{th} = \frac{1}{2l}(T_1 + T_2) \quad (2.96)$$

となる。

利得がしきい値よりも大きい場合には、共振器内の光強度は時間とともに増加していくが、無限に増加しつづけることはありえない。現実のレーザーにおいては、共振器内の光強度が大きくなると、誘導放出過程によってレーザー媒質内に生じている反転分布が小さくなり、その結果利得が減少することになる。特に時間的に定常的な発振の状態では、このような効果によって利得はちょうどしきい値に等しくなるまで減少し、利得と損失とがつり合っている。すなわち、ここで求めたレーザー発振のための利得係数のしきい値は、同時に定常発振の状態における利得係数の値でもある。

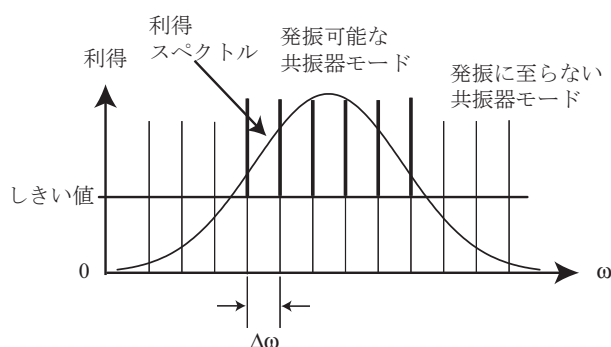


図 2.13: 共振器モードと利得のしきい値

前節で、ファブリー・ペロー共振器の共振器モードが角周波数に関して $\Delta\omega$ ごとに等間隔に存在することが示されたが、実際にレーザー発振を達成できるのは、図 2.13 のようにそれらのうちでその角周波数における利得がしきい値を超えたものだけである。多くの場合、レーザー媒質の利得は媒質の種類によって決まる広い周波数の範囲に広がっており、その範囲には多くの共振器モードが存在する。しかし、その中で利得がしきい値を超えるものだけが発振可能になる。

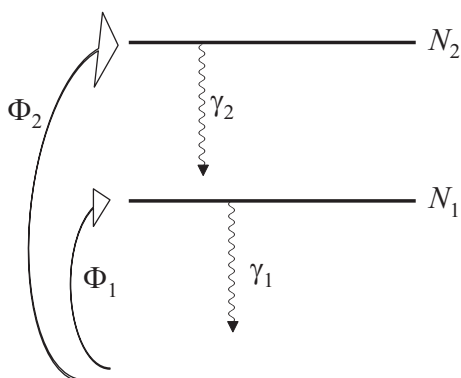


図 2.14: レーザー発振のレート方程式のための物質モデル

2.3.6 レーザー発振のレート方程式

ここで、利得がしきい値を超えたときに起こる現象について調べるために、図 2.14 のような簡単なモデルを導入しよう。誘導放出の下準位を準位 1，上準位を準位 2 とする。ポンピングにより、それぞれの準位に単位時間あたり Φ_1, Φ_2 の数の分布が生成されるとする。またそれぞれの準位の分布は、 γ_1, γ_2 のレートで減少するものとする。これらの準位の間のエネルギー差を $\hbar\omega$ とし、この系と共鳴する角周波数 ω の光のエネルギー密度を $U(\omega)$ とすると、それぞれの準位に分布する系の数 N_1, N_2 の時間変化は、

$$\frac{dN_2}{dt} = \Phi_2 - \gamma_2 N_2 - (N_2 - N_1)BU(\omega) \quad (2.97)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = \Phi_1 - \gamma_1 N_1 + (N_2 - N_1)BU(\omega) \quad (2.98)$$

与えられる。ここで、 B はアインシュタインの B 係数であり、第 1 項はポンピングによる分布の増加、第 2 項は緩和による減少、第 3 項は吸収及び誘導放出の過程による分布の増減を表している。一方、共振器内の光のエネルギー密度の時間変化は、

$$\frac{dU(\omega)}{dt} = -2\kappa U(\omega) + \hbar\omega(N_2 - N_1)BU(\omega) \quad (2.99)$$

のように書くことができる。ここで、 κ を単位時間あたりの光の振幅の減衰率とした。第 2 項は吸収と誘導放出による寄与であり、自然放出の寄与は無視できるものとしている。上のファブリー・ペロー共振器のモデルでは、共振器内損失の効果を反射鏡の反射率を使って表した。そのモデルによると、共振器を光が往復する時間 $2L/c$ の間に光の強度は損失をうけ（利得の効果を考えなければ）強度は $(1 - T_1)(1 - T_2)$ 倍になる。したがって $T_1, T_2 \ll 1$ とすると、

$$2\kappa = \frac{T_1 + T_2}{2L/c} \quad (2.100)$$

のように T_1, T_2 と κ を対応させることができる。上で得られた式 (2.97)-(2.99) が、レート方程式によるレーザー発振解析のための基本式である。

まずレーザー発振が起きていないとき、すなわち $U(\omega) = 0$ のときを考える。ポンピングが定常的である（時間に依存しない）とすると各準位の分布数も定常的になるので、それらを

$$N_2^{(0)} \equiv \frac{\Phi_2}{\gamma_2} \quad (2.101)$$

$$N_1^{(0)} \equiv \frac{\Phi_1}{\gamma_1} \quad (2.102)$$

とおく。また、反転分布の大きさを

$$\Delta N \equiv N_2 - N_1 \quad (2.103)$$

$$\Delta N^{(0)} \equiv N_2^{(0)} - N_1^{(0)} \quad (2.104)$$

とおく。すると、発振開始の条件は

$$\frac{dU(\omega)}{dt} = 0 \quad (2.105)$$

より、反転分布がしきい値

$$\Delta N_{th} = \frac{2\kappa}{\hbar\omega B} \quad (2.106)$$

を上回ることであることが分かる。

次に、定常発振の状態を考える。定常状態では、

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{dN_1}{dt} = 0 \quad (2.107)$$

$$\frac{dU(\omega)}{dt} = 0 \quad (2.108)$$

が成り立つ。式 (2.107) を用いると、式 (2.97) を γ_2 で割ったものと式 (2.98) を γ_1 で割ったものの差を取って、

$$\Delta N^{(0)} - \Delta N - \left(\frac{1}{\gamma_1} + \frac{1}{\gamma_2} \right) \Delta N B U(\omega) = 0 \quad (2.109)$$

が得られる。したがって、2 準位系の実効的な緩和時間

$$\tau \equiv \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\gamma_1} + \frac{1}{\gamma_2} \right) \quad (2.110)$$

を用いて、

$$\Delta N = \frac{\Delta N^{(0)}}{1 + 2\tau B U(\omega)} \quad (2.111)$$

が得られる。一方、式 (2.108) からは

$$\Delta N = \Delta N_{\text{th}} \quad (2.112)$$

が得られるので、最終的に定常発振における光のエネルギー密度

$$U_{\text{ss}}(\omega) = \frac{1}{2\tau B} \left(\frac{\Delta N^{(0)}}{\Delta N_{\text{th}}} - 1 \right) \quad (2.113)$$

が得られる。これをグラフに表すと、図 2.15 のようになる。

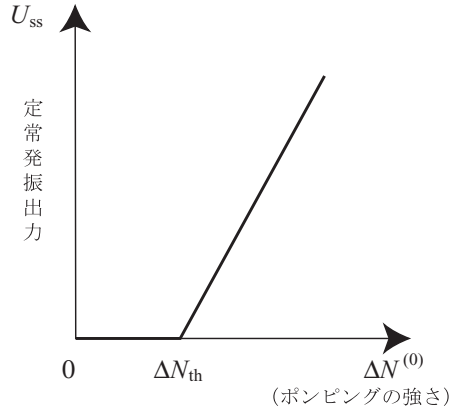


図 2.15: ポンピングの強さに対する定常発振強度

ここに現れる $\Delta N^{(0)}$ はポンピングの強さに対応した量であるので、ここから以下のことが言える。すなわち、定常的な発振では、ポンピングの強さがある値（しきい値）を超えないと発振が起こらない。ポンピングを徐々に上げていきしきい値を超えるとレーザー発振が開始し、その後レーザー出力は、ポンピングがしきい値を上回った量に比例して増加する。このような現象は、半導体レーザーの駆動電流依存性などにおいて容易に観測できる。

2.3.7 Qスイッチ

一般に共振器に対して、Q 値（quality value）を

$$Q = \frac{\omega W}{P_L} \quad (2.114)$$

で定義する。ここで、 ω は共振モードの角周波数、 W は共振器内に蓄えられているエネルギー、 P_L は単位時間あたりに共振器から失われるエネルギーである。まず、レーザー共振器のモデルとして 2.3.5

節のものをを用いて、 Q 値を求めてみる。いま共振器の体積を V とすると、共振器内に蓄えられている電磁波のエネルギーは $U(\omega)V$ と表される。また、光が共振器を 1 往復する間に失われるエネルギーは

$$U(\omega)V(1 - R_1R_2) \quad (2.115)$$

であるから、これを単位時間あたりにすると

$$P_L = \frac{U(\omega)V(1 - R_1R_2)}{2L/c} \quad (2.116)$$

である。したがって、 Q 値は

$$Q = \frac{2\omega L}{c(1 - R_1R_2)} \quad (2.117)$$

と求められる。反射率が 100% に近い極限では、

$$Q = \frac{2\omega L}{c(T_1 + T_2)} \quad (2.118)$$

と表される。一方 2.3.6 節のモデルを用いると、

$$Q = \frac{\omega}{2\kappa} \quad (2.119)$$

となる。

このように、レーザー共振器の Q 値は共振器としての質の良さを表す量であり、共振器の損失の大きさに反比例する。レーザー発振器がよく機能するためには、多くの場合 Q 値が大きな値をとる必要がある。ところが、式 (2.106) と式 (2.119) を比較すると、反転分布のしきい値すなわち定常発振における反転分布の大きさは Q 値に反比例することが分かる。つまり、 Q 値の大きな共振器ではレーザー媒質に大きな反転分布を生成することはできない。

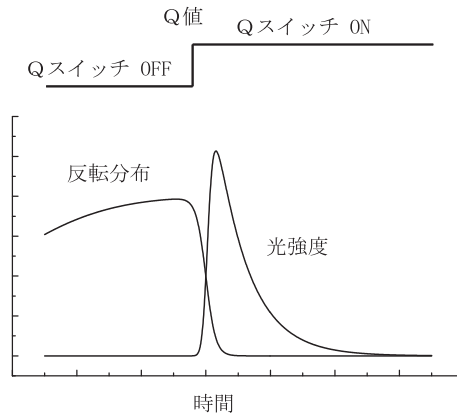


図 2.16: Qスイッチレーザーにおける時間発展

図 2.16 に示すように、共振器の Q 値を低くしてポンピングを続け十分大きな反転分布が出来てから急激に共振器の Q 値を高くすることにより、レーザー媒質内にたまったエネルギーを短時間にレーザー出力として取り出すことができる。このようなレーザー発振のさせ方を Q スイッチ (Q switching) という。多くの固体レーザーに Q スイッチの手法を適用することにより、定常発振の場合に比べて数万倍もの瞬間的な光出力を持つ強力なレーザーパルス (いわゆるジャイアントパルス) を得ることができる。得られるパルスの時間幅は、通常数ナノ秒程度である。

実際のレーザーに Q スイッチの手法を適用するには、電気光学効果を用いることが多い。電気光学効果とは、結晶などの媒質に電圧を印加されたときその媒質の光学的な性質が変化する効果のことで

ある。主に用いられる電気光学効果は、媒質の屈折率や屈折率の異方性が印加電場に比例して変化する、ポッケルス効果 (Pockels effect) である。ポッケルス効果は第6章で述べる2次の非線形光学効果の一種とみなすこともでき、反転対称性のない結晶においてのみ生じる。そのような結晶に高電圧を印加することにより、それを透過する光の偏光状態を制御することができる。したがって、電気光学結晶と偏光素子とを適当な組み合わせでレーザー共振器内に組み入れることにより、電氣的に1ナノ秒程度の短い時間で共振器のQ値をスイッチすることができる。

2.3.8 モード同期

発振モード間の位相関係を固定させることをモード同期 (mode locking) という。モード同期を用いることで、極限的に短い光パルスを発生させることができる。2.3.4節で見たように、ファブリー・ペロー共振器には角周波数 $\Delta\omega$ ごとに等間隔に共振器モードが存在している。多くの場合、レーザー媒質の利得スペクトルは $\Delta\omega$ に比べて広いので、しきい値を上回る利得を持ったモードが利得スペクトルの中に多数存在している。その結果、レーザー発振出力の電場は

$$E(t) = \sum_{n=-N}^N E_n \cos\{(\omega_0 + n\Delta\omega)t + \phi_n\} \quad (2.120)$$

のように表すことができる。ここで全発振モードの数を $2N+1$ とし、中心のモード (0番目のモード) の角周波数を ω_0 とした。また n 番目のモードの電場振幅を E_n 、初期位相を ϕ_n とおいた。このとき、各モードがそれぞれ独立に発振しているとすると、位相 ϕ_n はお互い無関係になるが、いま各モードがお互いに結合していて、位相が一定になったとする。このような状態をモード同期という。このとき $\phi_n = 0$ とすることができる。また、簡単のために全てのモードの電場振幅が一定値 $E_n = E_0$ をとるとする。すると、レーザー出力の光電場は

$$\begin{aligned} E(t) &= \sum_{n=-N}^N E_0 \cos\{(\omega_0 + n\Delta\omega)t\} \\ &= E_0 \operatorname{Re} \left\{ \sum_{n=-N}^N \exp[-i(\omega_0 + n\Delta\omega)t] \right\} \\ &= E_0 \operatorname{Re} \left\{ e^{-i\omega_0 t} \sum_{n=-N}^N (e^{-i\Delta\omega t})^n \right\} \\ &= E_0 \operatorname{Re} \left\{ e^{-i\omega_0 t} (e^{-i\Delta\omega t})^{-N} \frac{1 - (e^{-i\Delta\omega t})^{2N+1}}{1 - e^{-i\Delta\omega t}} \right\} \\ &= E_0 \operatorname{Re} \left\{ e^{-i\omega_0 t} \frac{e^{i(N+1/2)\Delta\omega t} + e^{-i(N+1/2)\Delta\omega t}}{e^{i\Delta\omega t/2} + e^{-i\Delta\omega t/2}} \right\} \\ &= E_0 \cdot \frac{\sin\left[\left(N + \frac{1}{2}\right)\Delta\omega t\right]}{\sin(\Delta\omega t/2)} \cos(\omega_0 t) \end{aligned} \quad (2.121)$$

と表される。ここで、 $\cos(\omega_0 t)$ の部分がいわゆる搬送波を表しており、残りの部分が時間的に変化する振幅である。レーザー光強度はこの振幅の2乗に比例するので、

$$I(t) = I_0 \frac{\sin^2\left[\left(N + \frac{1}{2}\right)\Delta\omega t\right]}{\sin^2(\Delta\omega t/2)} \quad (2.122)$$

となる。この式は、時間

$$T = \frac{2\pi}{\Delta\omega} \quad (2.123)$$

ごとに最大値 $(2N + 1)^2 I_0$ をとるパルス列 (pulse train) を表している。ここで式 (2.87) より,

$$T = \frac{2L}{c} \quad (2.124)$$

であり, これはちょうど光が共振器を往復するのにかかる時間 (cavity round trip time) に等しい。したがって, このようなパルス列が出力されるとき, モード同期レーザーの共振器内部では, 実際に光のパルスが一つだけ存在して共振器内を往復しており, これが出力鏡で反射されるたびに, その一部が外部に取り出されることになる。 $N = 10$ の場合の光強度の時間変化は, 図 2.17 のようになる。

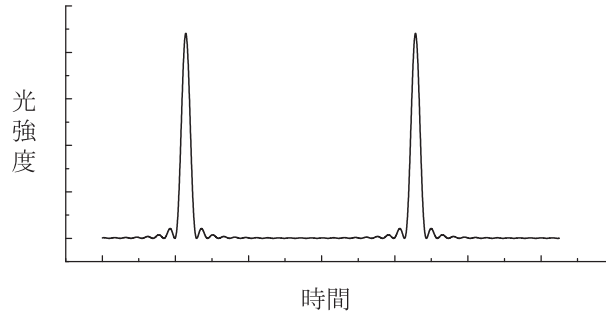


図 2.17: モード数が 21 の場合の, モード同期レーザーの出力光強度

各パルスの時間幅は, およそ

$$T/(2N + 1) = \frac{2\pi}{(2N + 1)\Delta\omega} \quad (2.125)$$

になっている。全発振スペクトル幅が約 $(2N + 1)\Delta\omega/2\pi$ である。一般に, 波形の時間幅とスペクトル幅との間にはフーリエ変換による不確定性関係が成り立つので, ここで得られたパルス幅は全発振スペクトル幅のもとで可能な最短のパルス幅である。このようにモード同期を用いることにより, レーザー媒質の利得スペクトルから得られる最短の光パルスを発生することができる。

モード同期レーザーによって, 典型的なパルス時間幅として 100 fs (フェムト秒) 程度のパルスが容易に得られる。ここでフェムトとは 10^{-15} を表す接頭語である。この場合, 共振器の長さを 1.5 m とすると共振器の往復時間は $T = 10$ ns (ナノ秒) であるから, 発振しているモードの数は式 (2.125) より 10^5 程度であることが分かる。超短光パルスを発生させる実際のモード同期レーザーにおいては, 多くの場合レーザー媒質の利得スペクトルは, 周波数に対して滑らかに変化しているのもので, それに対応して各発振モードの振幅も周波数に対して滑らかに変化する。出力パルスの時間波形はそのフーリエ変換で表されるので, これも時間に対してあまり振動しない滑らかな時間波形を持ったパルスが得られることになる。

実際にレーザーのモード同期をおこなう方法は様々あるが, 大きく分けて, 能動モード同期 (active mode locking) と受動モード同期 (passive mode locking) とがある。いずれの場合にも, ちょうどモード間隔 $\Delta\omega$ に等しい角周波数で共振器に変調が加えられると, 各発振モードの電場からはもとの角周波数に対して $\pm\Delta\omega$ だけ変化した側帯波が生じるので, ちょうどその角周波数を持つとなりの発振モードともとの発振モードとの間に結合が生じ, 互いの位相関係が固定される。そのようなモード間の結合が全発振スペクトルまで行き渡ることにより, モード同期が達成される。モード同期における変調の周期は, ちょうど光が共振器を往復するのにかかる時間である。能動モード同期では, 共振器の損失や利得をこの周期で外部から変調することにより, モード同期を達成する。損失変調の方法としては, 音響光学効果 (Acousto-optic effect) などが用いられる。利得変調には, 同じ共振器長をもつ別のモード同期レーザーの出力で光ポンピングする方法が用いられ, これは同期励起 (synchronous pumping) と呼ばれる。それに対して受動モード同期では, 共振器内の何らかの非線形性を用い, 発振光自身が

共振器を1往復するごとに自分自身に変調を加えることにより，モード同期を達成する。受動モード同期の方法としては，過飽和吸収体 (saturable absorber) を用いる方法や，カー・レンズ・モード同期 (Kerr lens mode locking) と呼ばれる方法などがある。

章末問題

1. 質量 m の静止している原子が，波長 λ の光子を一つ吸収した。吸収の前後における，系のエネルギーと運動量の保存について考察せよ。また特に，静止している水素原子が 10.2 eV のエネルギーを持つ光子を吸収したあとの速度はいくらか，計算せよ。

第3章 各種レーザー

3.1 レーザーで用いられる光学素子

3.1.1 誘電体多層膜

日常的に用いられる鏡や半透鏡 (half mirror) は、ガラスにアルミニウムなどの金属を蒸着して作成することが多いが、これらは光のエネルギーをわずかではあるが吸収するために、光強度の損失があり、また、高出力のレーザー光による温度上昇や光学損傷 (optical damage) が無視できない。そのため、レーザー共振器の内部や、高出力レーザー光には、誘電体多層膜を用いた光学素子を用いることが多い。

誘電体多層膜は、屈折率の異なる2種類の透明な誘電体材料を、ガラス等の基板の上に交互に重ねて蒸着することで作成される。多重干渉の効果により、ミラー、ビームスプリッター (beam splitter)、ダイクロイックミラー (二色性鏡; dichroic mirror)、バンドパスフィルターなどの各種フィルター (filter) などの特性を持った光学素子を作ることができる。また、波長とともに反射光の位相をシフトさせるチャープミラー (chirped mirror)、あるいは分散補償ミラー (dispersion compensation mirror) は、超短光パルス用に用いられる。誘電体多層膜に用いられる代表的な誘電体材料は、低屈折率層用が SiO_2 (屈折率は約 1.5)、高屈折率層用が TiO_2 (屈折率は約 2.3) である。

3.1.2 プリズム

波長による材料の屈折率が異なることにより、プリズムを透過する光の進行方向が変化する。このことを利用して、波長選択素子としてレーザー共振器内で用いられる。

また同時に、波長により透過光の位相が変化する。このことを利用して、超短パルスレーザーでは、分散補償素子として、プリズム対がレーザー共振器内 (intra-cavity) または共振器外 (extra-cavity) で用いられる。

3.1.3 回折格子

回折格子 (diffraction grating) により回折する光の進行方向は波長により異なるので、色素レーザーなどの波長選択素子として用いられる。

3.1.4 エタロン

エタロンとは、光を一部透過させる2枚の反射鏡を平行に置いたもの、または、一つの媒質の平行な端面を鏡の代わりに用いたものである。これらのものの光の透過率は、多重干渉により、波長および入射角の関数として変化するので、レーザー共振器内に置くことで波長選択素子として用いられる。

3.1.5 複屈折フィルター

石英などの複屈折性を持つ材料では、入射光は、媒質内で屈折率の異なる二つの偏光成分に分かれて伝搬する。その結果、一般には透過光の偏光状態は入射光とは変化するが、位相差がちょうど 2π の整数倍の場合は、偏光状態が変化しない。偏光を選択しているレーザー共振器内では、偏光状態が変化すると最終的に損失となるので、これは波長選択素子として機能し、複屈折フィルター (birefringent filter) と呼ばれる。

3.1.6 電気光学変調素子

電場をかけることにより屈折率や屈折率の異方性が変化する性質を電気光学効果 (Electro-optic effect; EO effect) といい、これを用いた変調素子を電気光学変調素子 (Electro-optic modulator; EO modulator) という。反転対称性のない媒質でのみ存在する 1 次の電気光学効果は、ポッケルス効果 (Pockels effect) と呼ばれ、Q スイッチなどに用いられる。反転対称性のある媒質でも存在する 2 次の電気光学効果は、カー効果 (Kerr effect) と呼ばれる。

3.1.7 音響光学変調素子

音波は粗密波であり、物質の屈折率は一般に密度に依存して変化する。透明媒質に超音波を伝搬させると、媒質内に屈折率の周期的な変調が生じ、透過型回折格子として働く。このような効果を音響光学効果 (Acousto-optic effect; AO effect) といい、その素子を音響光学変調素子 (Acousto-optic modulator; AO modulator) という。アルゴンイオンレーザーや Nd:YAG レーザーのモード同期のための変調素子や、キャビティ・ダンパー (cavity dumper) などに用いられる。

3.1.8 ブリュースター面

多くのレーザーでは、レーザー共振器内部での発振光の損失を低くすることが効率よいレーザー発振のために重要である。レーザー媒質やその他の光学素子による光吸収を極力減らすことは強いレーザー光による素子の損失を防ぐためにも必要であるが、それ以外に、レーザー媒質やレーザー管などの表面における反射損失を小さくするために、多くの場合ブリュースター面 (Brewster surface) が用いられる。

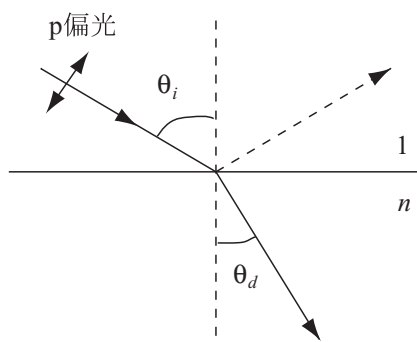


図 3.1: ブリュースター角

光が屈折率の異なる媒質の間の平らな界面に入射すると、一般には鏡面反射と透過光の屈折が起こるが、ある特別な条件を満たす場合には反射率がゼロとなり入射光の全てのエネルギーが透過する。

その条件とは，図 3.1 に示すように入射側の媒質の屈折率に対する透過側の媒質の屈折率の比を n としたとき，入射角 θ_i が，

$$\tan \theta_i = n \quad (3.1)$$

を満たし，かつ入射光の電場が入射面（界面の法線と入射光線とが作る面）内にある（p 偏光という）場合である。式 (3.1) を満たす入射角 θ_i をブリュースター角（Brewster angle）という。入射角がブリュースター角に等しいと，反射光線と透過光線とがなす角がちょうど 90 度になり，p 偏光の透過光の電場は反射光の進行方向に平行になるため，透過光の作る振動分極は反射光の方向に光を放射することができないのである。入射光線に対してブリュースター角をなすように置かれた光学素子などの面を，ブリュースター面という。固体レーザー媒質や気体レーザーのレーザー管の端面などは，ブリュースター面とされていることが多い。その他のレーザー共振器内に配置される光学素子もブリュースター角をなすように置かれることが多い。それによって，光学素子表面の反射による損失を極力抑えることが出来る。また，ブリュースター角における反射率の低減は p 偏光だけに起こる効果であり，入射面に対して垂直な電場を持つ偏光成分（s 偏光という）はブリュースター角においても有限の反射率を有する。Q 値の高いレーザー共振器においては，わずかの損失の差によって発振モードの選択が起こるので，ブリュースター面は単に反射損失を減らすだけではなく，同時に特定の偏光成分（p 偏光）のみを選択して発振させる効果を持つ。

3.2 固体レーザー

3.2.1 序

固体レーザーは，一般に透明な母材にイオンなどの発光中心をドーピングしたものを，レーザー媒質として用いている。このレーザー媒質に，ランプや他のレーザーからの光でポンピングをおこなうことにより反転分布を達成している。固体レーザーの母材は，強いポンピング光を照射される非常に過酷な環境に置かれるので，高い透明性，耐熱性，熱伝導性，また屈折率の温度依存性が小さいことなどが求められる。熱伝導率の高い材料は，必然的に硬い材料でもあるので，これらの条件は人造宝石にも用いられる結晶材料が満たすべき性質と重なっている。そのため固体レーザーの母材として用いられる材料には，人造宝石に用いられているものが多い。固体レーザー媒質の形状は，多くの場合円筒形であり，レーザー・ロッドと呼ばれる。その両端面はブリュースター角にカットされていることが多い。超短パルス用のレーザーでは円筒形の長さが極端に短くなっており，むしろ薄い円盤状になっていることがある。また大出力レーザーでは，直方体のスラブ（薄板）の形状をしている場合がある。

パルス・レーザーを励起するためのフラッシュ・ランプや，連続発振レーザーを励起するためのアーク・ランプを励起光源として用いる場合には，ランプの光を効率よくレーザー媒質に導くために，回転楕円体などの形状を持った反射鏡や散乱体でランプとレーザー媒質を囲む。近年大出力の半導体レーザーが大きく進歩してきており，従来のランプに変わって半導体レーザーを光ポンピングの光源として用いる例が増えている。その最大の利点は，半導体レーザーの出力波長を適切に選択することによりレーザー媒質の特定の準位への遷移を非常に効率よく励起できることである。ポンピングに利用されない光のエネルギーは最終的に熱となるため，レーザー発振の効率を向上させることは冷却装置の負担を減らすことにもつながる。特に，大出力レーザーではこれは重要な点である。半導体レーザーをポンピング光源として用いる場合，光ファイバーを用いたり，レーザー・ロッド端面から照射したりする方法を取る場合もある。

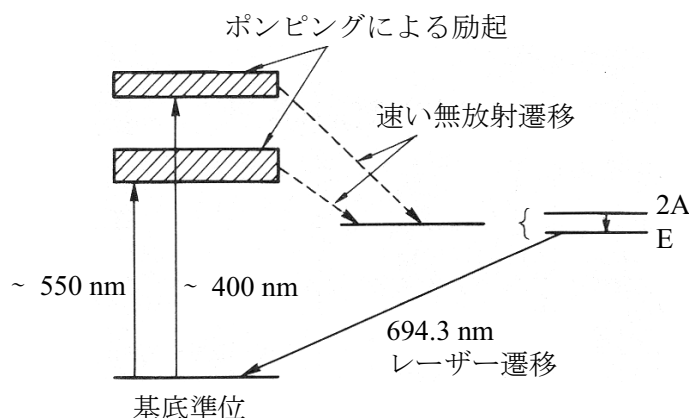


図 3.2: ルビーレーザーのエネルギー図

3.2.2 ルビーレーザー

ルビーレーザー (ruby laser) は初めて実現したレーザーであり、1960 年メイマン (T. H. Maiman) が発振に成功した。ルビーレーザーのレーザー媒質は人造のルビー結晶であり、サファイア (Al_2O_3) の結晶の中のアルミニウムイオン (Al^{3+}) の一部をクロムの 3 価のイオン (Cr^{3+}) で置き換えたものである。その準位図を図 3.2 に示す。 Cr^{3+} イオンは $3s^2 3p^6 3d^3$ という電子配置を持つ。ルビーの結晶においては、 Cr^{3+} イオンは 6 個の O^{2-} イオンに囲まれ、その結晶場の影響を受ける。のちに述べる Nd^{3+} イオンの f 電子の場合と比べると、d 電子は結晶場の影響をはるかに強く受けることが特徴である。この結晶場で生じる d 電子の準位間の遷移のうち、およそ 550 nm と 400 nm を中心とする広い吸収スペクトルをもつ遷移によって基底状態より光ポンピングされ、速い無放射遷移を経たのち最低励起状態から波長 694.3 nm (赤色) の光を出して基底状態に戻る。この遷移が、レーザーに用いられる遷移である。したがってルビーレーザーは 3 準位レーザーであり、効率が悪いため、現在ではごく一部の用途にのみ使用されている。フラッシュランプによる光ポンピングによって数 Hz までの低繰り返しでのパルス発振で使用され、Q スイッチが効果的である。

3.2.3 Nd:YAG レーザー

Nd は、日本語ではネオジム、英語では neodymium という希土類元素 (ランタノイド) であり、その 3 価のイオン Nd^{3+} はいろいろな母材にドーピングすることによって効率のよいレーザー媒質として用いられている。 Nd^{3+} イオンは $4f^3 5s^2 5p^6$ という電子配置を持ち、4f 電子が光学遷移に関与する。4f 電子は外側の 5s5p 電子によって遮蔽されているため、そのエネルギー準位はより外側の結晶場の影響をあまり受けない。その結果、 Nd^{3+} の f 電子の遷移のスペクトルは鋭くなる。エネルギー準位図を図 3.3 に示す。 Nd^{3+} は、730 nm と 800 nm を中心とする光でポンピングされたのち、速い無放射遷移である準位に緩和しおよそ 1064 nm (赤外光) の光を放出するが、このときの下準位は基底準位より高いエネルギーにあるので、 Nd^{3+} イオンを用いたレーザーは 4 準位レーザーとなる。

Nd^{3+} イオンを YAG (yttrium aluminum garnet, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) (「ヤグ」と読む。) にドーピングした Nd:YAG は、固体レーザーとして最も普及しているレーザー材料である。最大で数 kW までの大出力の発振が可能であり、連続発振および数 Hz から数 kHz 程度の繰り返しのパルス発振が一般に実現されている。多くの用途において、Q スイッチによってパルス幅 10 ns 程度の大出力パルスが発生され、その第 2 高調波 (532 nm, 緑色)、第 3 高調波 (355 nm, 紫外)、第 4 高調波 (266 nm, 紫外) に波長変換され

て用いられることも多い。Nd:YAG 以外に、Nd:YLF (LiYF_4)、Nd:YVO₄、Nd:ガラスなどのレーザー材料も、それぞれに適した用途で用いられる。

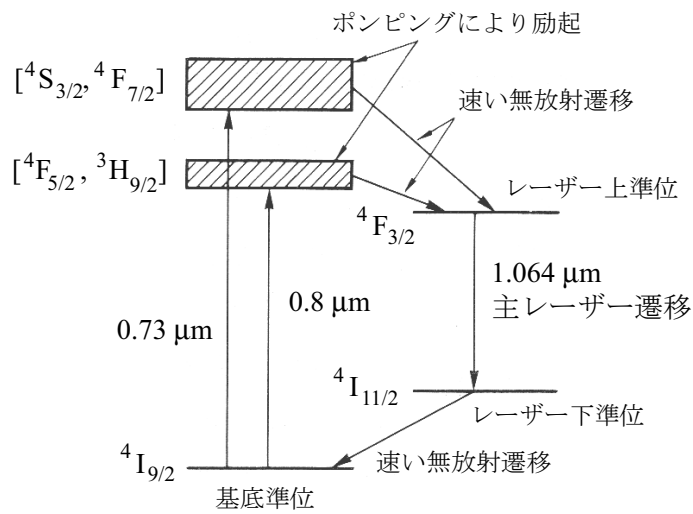


図 3.3: Nd:YAG レーザーのエネルギー図

3.2.4 チタンサファイアレーザー

チタンサファイア (Ti:sapphire) レーザーは、波長可変の固体レーザーとして最も広く用いられているものである。ルビーレーザーの母材と同じサファイア (Al_2O_3) に Cr^{3+} の代わりに Ti^{3+} をドープしたのが、Ti:Al₂O₃ (チタン添加サファイア) である。 Ti^{3+} は $3s^2 3p^6 3d^1$ の電子配置を持ち、d 電子がレーザー遷移に関与する。サファイアの結晶場の中で、 Ti^{3+} の d 電子の基底準位と最低励起準位における周りの原子の平衡位置が大きく異なることにより、吸収スペクトル・発光スペクトルがともに非常に幅広くなり、また互いに大きくシフトする。そのために、700 nm から 1 μm 程度までの非常に広い波長範囲でレーザー発振が可能となる。

このように、発振可能スペクトル幅の広いレーザー材料を用いると、レーザー共振器内に波長選択素子を挿入することにより、波長可変レーザーとすることができる。また、波長選択をしないで、適切な共振器構造を持たせることによりモード同期をおこない、非常に時間幅の短いパルス光を出力することも可能である。チタンサファイアレーザーを用いると、最短で 10 fs 以下の超短光パルスを発生することができる。

3.2.5 ファイバーレーザーとファイバー増幅器

希土類イオンである Er^{3+} は、光通信に用いられる 1.55 μm で利得が得られるので、光ファイバーにドープされて、光通信用の光増幅器として用いられる。エルビウム添加ファイバー増幅器 (EDFA: erbium-doped fiber amplifier) と呼ばれ、実用になっている。Er やその他の希土類イオンを光ファイバー中にドープしたものをレーザー媒質としたレーザー (レーザー発振器) もあり、さかんに開発が進められている。

3.3 気体レーザー

気体レーザーは、一般に気体を封入した真空管などに放電によってポンピングをおこない、気体原子・分子やイオンを励起する。励起準位の寿命が比較的長く、利得の小さいHe-Neレーザーや希ガスイオンレーザーなどと、逆に励起準位の寿命が短く、利得の大きいエキシマーレーザー、窒素レーザー、銅蒸気レーザーなどでは、共振器の構造も若干異なる。また、発振線幅（レーザー出力光のスペクトル幅）が狭く、その波長が安定しているというのが気体レーザーの特徴として挙げられるが、これは、おもに前者のグループの特徴である。

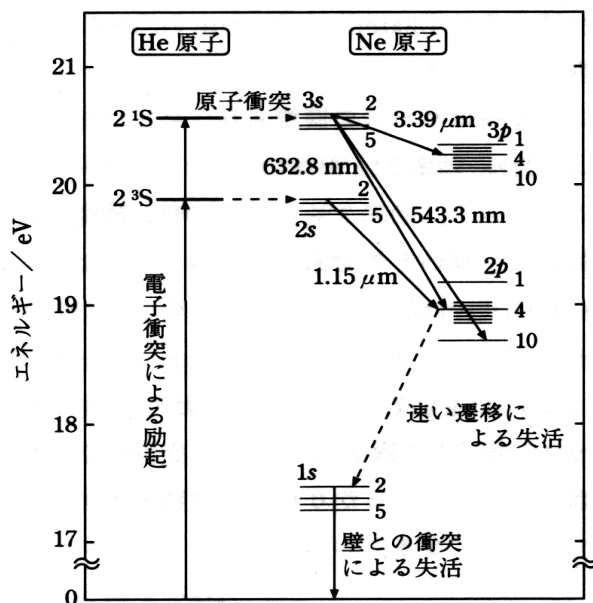


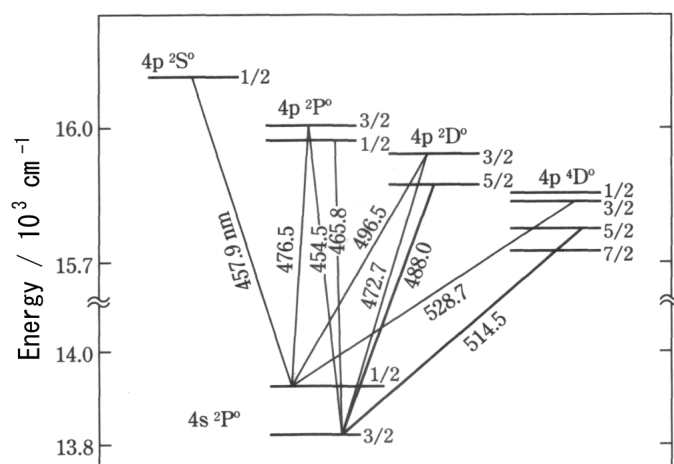
図 3.4: ヘリウムネオンレーザーのエネルギー図

3.3.1 He-Ne レーザー

ヘリウムネオン (He-Ne) レーザーでは、真空管に He と Ne の混合ガスを封入し、管の両端から放電することによって励起する。すると、励起状態の He 原子から衝突によるエネルギー移動によって効率よく Ne 原子が励起され、反転分布を生じることができる。図 3.4 にヘリウムネオンレーザーのエネルギー図を示した。レーザーに最もよく用いられるのは 632.8 nm (赤色) の発振線であるが、それ以外にもいくつかの波長でレーザー発振する。比較的低出力の出力が簡単な装置で得られるので、広く使われている。最近では半導体レーザーの普及に伴い用途が縮小しつつあるが、スペクトル幅が狭く、発振が安定しているため、干渉計などの多くの利用分野では、依然としてよく使用されている。

3.3.2 希ガスイオンレーザー

アルゴンイオンレーザー (Ar-ion laser) や、クリプトンイオンレーザー (Kr-ion laser) では、放電によってこれらの原子がイオン化し、それがレーザー発振に寄与する。これらのレーザーは、比較的大型で高価であるが、比較的大出力のレーザー光が得られ、エンターテインメント用や研究用に広く用いられている。図 3.5 にアルゴンイオンレーザーのエネルギー図を示した。Ar⁺ レーザーの代表的な発振線は、488.0 nm (青色) と、514.5 nm (緑色) であり、Kr⁺ レーザーは、647.1 nm (赤色) など

図 3.5: アルゴンイオン (Ar⁺) のエネルギー図

発振する。これらの3本の発振線を合わせると光の3原色になるので、各種のディスプレイに用いられる。また、これらのレーザーは、ここに挙げた以外にも多数の発振線を有し、その中の1本を選択して発振させたり、同時に多波長で発振させたりすることができる。ArとKrの混合気体を用いることにより、一つのレーザー管で3原色を同時に発振できる装置もある。

3.3.3 エキシマーレーザー

原子や分子が電子励起状態でのみ結合をつくるとき、その結果できた化合物をエキシマー (excimer) という。多くの希ガス原子とハロゲン原子とがエキシマーを作り、レーザーに利用されている。それらをエキシマーレーザーという。表 3.1 に代表的なエキシマーレーザーと、その発振波長を示す。

表 3.1: 代表的なエキシマーレーザー

エキシマー	レーザー波長
ArF	193 nm
KrCl	222 nm
KrF	249 nm
XeCl	308 nm
XeF	351 nm, 353 nm
F ₂	157 nm

このうち F₂ レーザーは厳密にはエキシマーレーザーではないが、装置・用途とも他のエキシマーレーザーと重なるので、エキシマーレーザーに分類されることがある。これらは、おもに紫外光を発生するレーザーとして重要であり、半導体リソグラフィなどが代表的な応用分野である。

3.3.4 炭酸ガスレーザー

気体分子をレーザー媒質として用いたレーザーも、各種ある。炭酸ガス (CO₂) レーザーは分子の振動準位間の遷移を用いる代表的なレーザーであり、10.6 μm を中心とした赤外 (中赤外) 光を発生

する。

3.3.5 窒素レーザー

窒素レーザーは分子の電子状態間の遷移を利用したレーザーで、比較的簡単な装置で、パルス発振により 337.1 nm の近紫外光の出力が得られる。

3.3.6 金属蒸気レーザー

銅蒸気レーザー (copper vapor laser) は、銅を熱して蒸気としたものをレーザー媒質として用いており、510.6 nm (緑色) と 578.2 nm (黄色) のパルス発振が得られる。He-Cd レーザーは、He ガス中の Cd の蒸気を用い、325.0 nm (紫外)、441.6 nm (青色)、533.7 nm (緑色)、537.8 nm (緑色)、635.5 nm (赤色)、636.0 nm (赤色) などの多数の発振線を有する。これらを同時に発振させることにより、白色のレーザー光を得ることができる。

3.3.7 遠赤外レーザー

炭酸ガスレーザーの 10.6 μm の出力でメタノール (CH_3OH) などの気体分子を光ポンピングすることにより、遠赤外 (テラヘルツ波ともいう) 領域の電磁波を発生する気体レーザーができる。メタノールの場合、発振波長は、118.83 μm (2.52 THz) などである。

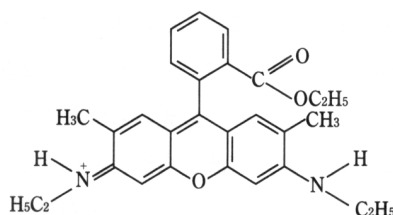


図 3.6: ローダミン 6 G の分子構造

3.4 色素レーザー

有機分子である色素 (dye) をレーザー媒質として用いることにより、波長可変のレーザーが得られる。色素レーザーはおもに溶液の形で用いられるので、液体レーザーであるといえる。色素は一般に分子量の比較的大きな複雑な分子であり、非常に広い発光スペクトルを持つ。図 3.6 に、代表的なレーザー色素であるローダミン 6 G の分子構造を示す。図 3.7 にレーザー色素のエネルギー構造を模式的に示す。レーザー色素の電子状態は、全てのスピンの対になっている 1 重項 (singlet) 状態と、1 対のスピンのそろっている 3 重項 (triplet) 状態に分けられ、互いの間の移り変わり (項間交差; intersystem crossing) は比較的ゆっくりしか起こらない。電子準位は一般に 1 重項状態が基底状態から順に S_0 , S_1 , S_2 のように、3 重項状態がエネルギーの低いものから順に T_1 , T_2 のように呼ばれる。レーザー色素は一般に多くの原子からなる複雑な分子であるので、それぞれの電子準位には多数の振動励起準位が付随している。

色素レーザーは、通常フラッシュランプや他のレーザーによって光ポンピングされる。色素レーザーは、チタンサファイアレーザーと同じように波長可変レーザーやモード同期短パルスレーザーとして用いられる。色素は非常に多くの種類が存在し、また新しい色素が合成可能であるので、発振波長やその他の使用条件に応じたものが用意できることが大きな特徴である。しかし、比較的早く劣化してしまうことが欠点である。最近では、波長可変固体レーザーの普及に伴って使用分野が狭まりつつある。

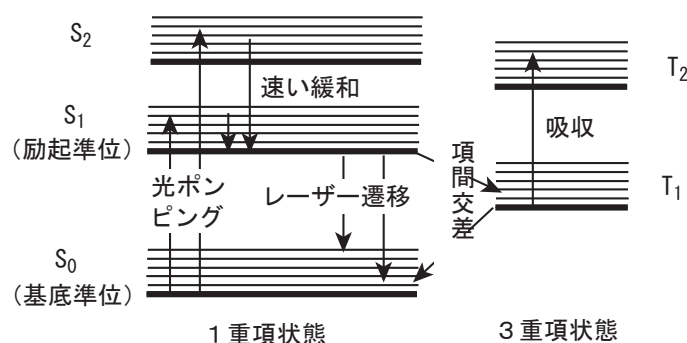


図 3.7: レーザー色素のエネルギー構造

3.5 半導体レーザー

半導体レーザー（laser diode）は今日の我々にとってもっとも身近なレーザーであり、また技術的な進歩が激しいレーザーである。特徴は、小型であること、比較的低出力であること、エネルギー効率が大変よいこと、電気的な方法で高速に出力を変調できることなどである。情報通信関係を中心に広く用いられている。最近では高出力のものも開発されており、従来固体レーザーや気体レーザーが用いられてきた分野でも、半導体レーザーが用いられるようになりつつある。また、大出力半導体レーザーの進歩により、従来ランプが用いられてきたレーザーの光ポンピングに、半導体レーザーの出力を用いるものが普及しつつある。

半導体レーザーについては、このテキストではくわしく扱わない。

3.6 その他のレーザー

その他のレーザーとして、加速度運動する自由電子からの放射を用いた自由電子レーザー（free electron laser）や、化学反応のエネルギーによって反転分布を作る化学レーザー（chemical laser）などが挙げられる。原子の内殻電子の遷移を利用したエックス線レーザーも開発が進められている。

第4章 光と物質との相互作用（古典論）

4.1 マクスウェル方程式と電磁波

まずは、電場と磁場の振舞いを記述する基本方程式であるマクスウェル方程式（Maxwell equations）から出発して、物質中の電磁波について調べていこう。

一般に光の周波数で振動する磁場に対する物質の透磁率（permeability）は真空における値 μ_0 とほぼ等しいので、光に対する物質の応答を議論する上では物質の磁性的な性質は考慮しないこととする。磁性体でない媒質中でのマクスウェル方程式は、

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (4.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mathbf{J} \quad (4.2)$$

$$\epsilon_0 \nabla \cdot \mathbf{E} = \rho \quad (4.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (4.4)$$

と表される。ここで \mathbf{E} , \mathbf{H} は電場と磁場であり、 \mathbf{J} , ρ はそれぞれ電流密度と電荷密度である。 ϵ_0 は真空の誘電率（vacuum permittivity）である。ベクトル演算に関する恒等式 $\nabla \cdot \nabla \times \mathbf{H} = 0$ を用いて、式 (4.2), (4.3) から、電荷に関する連続の式（equation of continuity）

$$\boxed{\nabla \cdot \mathbf{J} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0} \quad (4.5)$$

が得られる。

電荷が束縛電荷のみからなるとき、双極子モーメント密度すなわち分極（polarization） \mathbf{P} を用いて、

$$\rho = -\nabla \cdot \mathbf{P} \quad (4.6)$$

$$\mathbf{J} = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad (4.7)$$

という関係が成り立つので、電束密度（electric displacement） $\mathbf{D} \equiv \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ を用いて、マクスウェル方程式を

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (4.8)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (4.9)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (4.10)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (4.11)$$

と書くことができる。

電場 \mathbf{E} があまり大きくないときは、媒質内に生じる分極は電場に比例する。このとき電気感受率（electric susceptibility） χ を

$$\boxed{\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E}} \quad (4.12)$$

によって定義する。 χ はベクトルとベクトルの間の比例関係を表すものであるから、一般には2階のテンソルと呼ばれる量であり 3×3 の行列で表されるが、光学的に等方的な媒質（空気、ガラス、水や、食塩の結晶など）などではスカラーとなる。また、電場・分極とも特定の偏光のみを考慮する場合も、それらの間の比例定数として、一つのスカラー量が決まるので、テンソルとしての性質を明示的に考慮しなくてもよくなる。ここでは簡単のためにスカラーであるものとする。

誘電率（permittivity） ϵ は電束密度と電場との間の比例係数なので、

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon_0(1 + \chi) \mathbf{E} \quad (4.13)$$

より、

$$\frac{\epsilon}{\epsilon_0} = 1 + \chi \quad (4.14)$$

なる関係が成り立つ。誘電率も、電気感受率と同様に、一般には2階のテンソルであるが、ここではスカラーであるとする。

電場・分極がベクトルであることを考慮すると、式(4.12)を一般化して、電場ベクトルの x, y, z 成分 E_x, E_y, E_z と分極ベクトルの各成分 P_x, P_y, P_z との間に成り立つ関係として、

$$P_i = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij} E_j = \epsilon_0 (\chi_{ix} E_x + \chi_{iy} E_y + \chi_{iz} E_z) \quad (4.15)$$

が得られる。ここで、 i と j は、 x, y, z のどれかであり、 χ_{ij} が、感受率テンソルの各成分を表す。

誘電率の場合も同様に、電場と電束密度の各ベクトル成分は、誘電率テンソルの各成分によって

$$D_i = \sum_j \epsilon_{ij} E_j = (\epsilon_{ix} E_x + \epsilon_{iy} E_y + \epsilon_{iz} E_z) \quad (4.16)$$

のように関係付けられる。

感受率や誘電率のテンソルは、行列を用いて

$$\chi_{ij} = \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{bmatrix} \quad (4.17)$$

$$\epsilon_{ij} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} & \epsilon_{zy} & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (4.18)$$

のように表すことができ、そのとき分極や電束密度は、

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \quad (4.19)$$

$$\begin{bmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} & \epsilon_{zy} & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \quad (4.20)$$

と表される。

感受率テンソルや誘電率テンソルのとりうる値は、媒質が有する対称性に依りて制限がある。たとえば、光学的に等方的な媒質では、対角成分以外はゼロとなり、さらに全ての対角成分は互いに等しい。感受率テンソルや誘電率テンソルの添え字として、 x, y, z の代わりに 1, 2, 3 を用いることもある。

誘電率を用いると電荷が束縛電荷のみからなる媒質におけるマクスウェル方程式は，

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (4.21)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (4.22)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \quad (4.23)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (4.24)$$

と表される。

束縛されていない電荷があるときには，分極とは別に電流が生じる。電場が小さいときには，これは電場に比例すると考えられるので，

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E} \quad (4.25)$$

のように表される。ここで，比例係数 σ はこの媒質の電気伝導度（electric conductivity）あるいは，電気伝導率，単に伝導度などと呼ばれる。これはオームの法則（Ohm's law）の微視的な表式になっている。電気伝導度は，一般には2階のテンソルであるが，ここでは簡単のためにスカラーとしている。この場合マクスウェル方程式は，

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (4.26)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \sigma \mathbf{E} \quad (4.27)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \quad (4.28)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (4.29)$$

と表される。

式 (4.21) の回転（rotation）を取ると，

$$\begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \mathbf{E} &= -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times \mathbf{H}) \\ &= -\epsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \end{aligned} \quad (4.30)$$

となる。ベクトル演算に関する恒等式 $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}$ を用いると，上式から

$$\boxed{\nabla^2 \mathbf{E} = \epsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}} \quad (4.31)$$

が得られる。（ ϵ が実数のとき）これは波動方程式（wave equation）と呼ばれる方程式であり，その解は速さ

$$\boxed{v_p = \frac{1}{\sqrt{\epsilon \mu_0}}} \quad (4.32)$$

で伝搬する波動を表す。ここで v_p はこの波の位相速度（phase velocity）と呼ばれる。すなわち，電場と磁場が波動すなわち電磁波として空間を伝搬することが導かれた。真空中ではその速度は

$$\boxed{c = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}}} \quad (4.33)$$

となる。

4.2 複素数の感受率・誘電率・屈折率

媒質が何らかのエネルギー構造を持っているときには、その媒質中に生成される分極が時々刻々の電場に比例するという式 (4.12) は、そのままでは正しくない。この場合、感受率が周波数に依存すると考え、分極と電場をそれぞれ時間に関してフーリエ変換した各フーリエ成分

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega t) dt \quad (4.34)$$

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega t) dt \quad (4.35)$$

の間に比例関係

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \mathbf{E}(\omega) \quad (4.36)$$

があると考えることができる。誘電率

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_0 [1 + \chi(\omega)] \quad (4.37)$$

も、同じように周波数に依存したものになる。これらの感受率や誘電率は、一般に複素数となる。電場と磁場のフーリエ成分は、マクスウェル方程式

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = i\omega\mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) \quad (4.38)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) = -i\omega\epsilon(\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \quad (4.39)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad (4.40)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad (4.41)$$

を満たす。これらから、前の場合と同様にして波動方程式に相当する式

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\omega^2 \epsilon\mu_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \quad (4.42)$$

が得られる。

いま、この方程式を満たす電場として z 方向に進む単色の平面波

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp[i(kz - \omega t)] \quad (4.43)$$

を考える。上の方程式を用いると、波数と角周波数との間に

$$k^2 = \omega^2 \epsilon\mu_0 \quad (4.44)$$

の関係が成り立つことが導かれる。このような波数と角周波数との間の関係を一般に分散関係 (dispersion relation) という。

一般に、式 (4.43) のように表される波の位相速度 v_p は、

$$v_p = \frac{\omega}{k} \quad (4.45)$$

で与えられる。

誘電率 ϵ が実数のときには、これより位相速度

$$v_p = \frac{1}{\sqrt{\epsilon\mu_0}} \quad (4.46)$$

が得られる。真空中の電磁波の伝搬速度は式 (4.33) で与えられるので、

$$v_p = c \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\epsilon}} \quad (4.47)$$

となる。そこで（実数の）屈折率（refractive index）を

$$n = \sqrt{\frac{\epsilon}{\epsilon_0}} \quad (4.48)$$

で定義する。すると、位相速度は

$$v_p = \frac{\omega}{k} = \frac{c}{n} \quad (4.49)$$

と表される。

光のパルスは、いろいろな周波数の波が重ねあわされた波束（wave packet）として表され、そのエネルギーの中心は、群速度（group velocity）

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} \quad (4.50)$$

で移動する。これを屈折率 n で表すと、

$$\frac{d\omega}{dk} = \left[\frac{dk}{d\omega} \right]^{-1} = \left[\frac{d}{d\omega} \left(\frac{n\omega}{c} \right) \right]^{-1} = c \left[n + \omega \frac{dn}{d\omega} \right]^{-1} \quad (4.51)$$

であるので、群屈折率（group refractive index） n_g を式

$$v_g = \frac{c}{n_g} \quad (4.52)$$

で定義すると、群屈折率は

$$n_g = n + \omega \frac{dn}{d\omega} \quad (4.53)$$

と表される。また真空中の波長 λ を用いて

$$n_g = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} \quad (4.54)$$

とも表される。

誘電率が複素数のときにも、実数の場合の式 (4.48) を拡張して複素屈折率を

$$\tilde{n} \equiv \sqrt{\frac{\epsilon}{\epsilon_0}} = \sqrt{1 + \chi} \quad (4.55)$$

で定義する。その実部を新たに n 、虚部を κ とすると、

$$\tilde{n} = n + i\kappa \quad (4.56)$$

のように書ける。この場合、右辺の n が通常の意味の屈折率であり、 κ は消衰係数（extinction coefficient）と呼ばれる。このテキストでは、これより後、“ n ” は、誘電率が実数の場合に式 (4.48) で定義される屈折率または、一般的に式 (4.55) で定義される複素屈折率の実部、のどちらかを指すものとする。

誘電率や屈折率が複素数の場合にも、光の電場を式 (4.43) の形に表すと、やはり式 (4.44) が成り立つので、

$$k = \frac{\tilde{n}\omega}{c} = \frac{(n + i\kappa)\omega}{c} \quad (4.57)$$

となる。これを式 (4.43) に代入すると、

$$\begin{aligned} E(\mathbf{r}, t) &= E_0 \exp[i(kz - \omega t)] \\ &= E_0 \exp\left[i\omega\left(\frac{n}{c}z - t\right) - \frac{\omega\kappa}{c}z\right] \end{aligned} \quad (4.58)$$

が得られる。これから、このような媒質における電磁波の位相速度は

$$v_p = \frac{c}{n} \quad (4.59)$$

であり、 κ は波の減衰の大きさを表すことが分かる。

いま光の強度を $I(z)$ として、これが指数関数的に

$$I(z) = I(0) \exp(-\alpha z) \quad (4.60)$$

のように減衰するとする。このとき、 α を吸収係数 (absorption coefficient) という。のちほど述べるように、光の強度は電場の振幅の 2 乗に比例するので、 α は

$$\alpha = \frac{2\omega\kappa}{c} \quad (4.61)$$

のように κ に比例することが分かる。あるいは、真空中の波長

$$\lambda = \frac{2\pi c}{\omega} \quad (4.62)$$

を用いて

$$\alpha = \frac{4\pi\kappa}{\lambda} \quad (4.63)$$

とも表すことができる。

複素屈折率の実部・虚部と電気感受率の実部・虚部との間には、以下のような関係が成り立つ。いま、電気感受率 χ を実部 χ' と虚部 χ'' とに分け、

$$\chi = \chi' + i\chi'' \quad (4.64)$$

のように表すと、

$$\tilde{n}^2 = (n + i\kappa)^2 = 1 + \chi = 1 + \chi' + i\chi'' \quad (4.65)$$

であるから、それぞれの実部と虚部を比較して、

$$1 + \chi' = n^2 - \kappa^2 \quad (4.66)$$

$$\chi'' = 2n\kappa \quad (4.67)$$

となる。これを n と κ に関して解くと、

$$n^2 = \frac{1}{2} \left[(1 + \chi') + \sqrt{(1 + \chi')^2 + 4(\chi'')^2} \right] \quad (4.68)$$

$$\kappa = \frac{\chi''}{2n} \quad (4.69)$$

が得られる。多くの場合 $\kappa \ll 1$ であるので、そのときには近似的な関係式

$$n = \sqrt{1 + \chi'} \quad (4.70)$$

$$\kappa = \frac{\chi''}{2\sqrt{1 + \chi'}} \quad (4.71)$$

がよく成り立つ。

誘電率 ϵ の実部と虚部をそれぞれ ϵ' , ϵ'' とすると,

$$\epsilon = \epsilon' + i\epsilon'' \quad (4.72)$$

と表され, 式 (4.14) より,

$$\epsilon' = \epsilon_0(1 + \chi') \quad (4.73)$$

$$\epsilon'' = \epsilon_0\chi'' \quad (4.74)$$

となる。

一般に線形応答の応答関数のフーリエ変換の実部と虚部との間には, 因果律 (causality) の要請によってクラマース・クローニッヒの関係式 (Kramers-Kronig relations) が成り立つ。上で述べた $\chi(\omega)$ や $\epsilon(\omega)$ も電場に対する分極や電束密度の線形応答の応答関数のフーリエ変換であるので, その実部 χ' , ϵ' と虚部 χ'' , ϵ'' との間にはクラマース・クローニッヒの関係式

$$\chi'(\omega) = \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\omega' \chi''(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (4.75)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\chi'(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (4.76)$$

$$\epsilon'(\omega) - \epsilon_0 = \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\omega' \epsilon''(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (4.77)$$

$$\epsilon''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\epsilon'(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (4.78)$$

が成り立つ。また, 屈折率と消費係数との間にも

$$n(\omega) - 1 = \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\omega' \kappa(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (4.79)$$

$$\kappa(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{n(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (4.80)$$

が成り立つ。ただし, ここで \mathcal{P} はコーシー (Cauchy) の主値を表し,

$$\mathcal{P} \int_0^\infty \frac{f(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' = \lim_{\delta \rightarrow 0} \left(\int_0^{\omega-\delta} \frac{f(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' + \int_{\omega+\delta}^\infty \frac{f(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \right) \quad (4.81)$$

を意味する。

誘電率のうち実部は, 電場と同位相の分極成分に対応し, 虚部は位相が $\pi/2$ だけ遅れた成分に対応している。あとで見ると, 虚部による分極は媒質内での電磁場のエネルギーの散逸を引き起こす。ところで, 電流密度は式 (4.7) のように電場の時間微分に比例する。時間微分は位相を $\pi/2$ だけ進める働きをするので, 誘電率の実部と虚部は, 電流密度のうち電場に対して $\pi/2$ 進んだ成分と, 同位相の成分にそれぞれ対応することとなる。したがって分極, 電流密度の二つの成分を切り離して, 分極, 電流密度ともに電場と同位相であるとみなすことができる。すると誘電率, 電気伝導度ともに実数とすることができる。この場合, エネルギーの散逸は媒質中に生じる電流密度によるとみなすことができる。このときマクスウェル方程式は,

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = i\omega\mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) \quad (4.82)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) = -i\omega\epsilon(\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \sigma(\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \quad (4.83)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad (4.84)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad (4.85)$$

のようになる。ここで誘電率 $\epsilon(\omega)$ は実数にとることができ, そのとき電気伝導度は, 元々の誘電率や感受率の虚部と

$$\sigma(\omega) = \omega\epsilon''(\omega) = \epsilon_0\omega\chi''(\omega) \quad (4.86)$$

という関係にある。

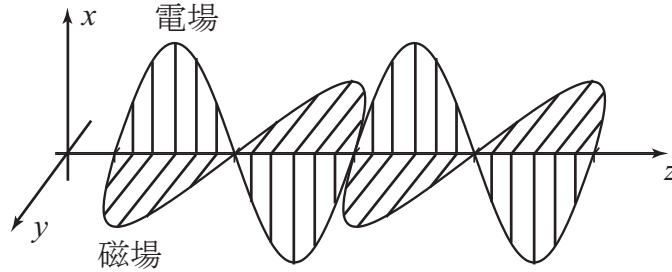


図 4.1: 単色平面波の電磁波の電場と磁場のようす

4.3 振動磁場

これまででは電磁波の電場のみに注目したが、ここで磁場の振舞いを見ておこう。式 (4.58) で表される電場に対応して、磁場も

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 \exp[i(kz - \omega t)] \quad (4.87)$$

の形に表すことができる。いま、電場は x 成分のみを持つと仮定し、 $\mathbf{E}_0 = (E_0, 0, 0)$ とする。すると、マクスウェル方程式の第 1 式より磁場は y 成分のみを持つことが分かるので、 $\mathbf{H}_0 = (0, H_0, 0)$ とすると、

$$H_0 = \frac{k}{\mu_0 \omega} E_0 \quad (4.88)$$

の関係が導かれる。 k と ω との関係 (式 (4.44)) から、

$$H_0 = \sqrt{\frac{\epsilon}{\mu_0}} E_0 = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} (n + i\kappa) E_0 \quad (4.89)$$

となる。これより、誘電率が実数のときには磁場は電場と同位相であるが、有限の虚部があるときにはわずかに位相が遅れることが分かる。なお、ここに現れる $Z_0 \equiv \sqrt{\mu_0/\epsilon_0} = (\sqrt{\epsilon_0/\mu_0})^{-1}$ は抵抗の次元を持つ定数で、真空のインピーダンスと呼ばれる。その値は $376.7 \, \Omega$ である。電場と磁場のようすを、図 4.1 に示した。

4.4 電磁波のエネルギーと強度

マクスウェル方程式 (4.8-4.11) の第 2 式の両辺と \mathbf{E} との内積を取ると、

$$\mathbf{E} \cdot (\nabla \times \mathbf{H}) = \frac{\epsilon_0}{2} \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) + \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad (4.90)$$

が得られる。ただしここで関係式

$$\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) = \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (4.91)$$

を用いた。同様に、第1式の両辺と H との内積を取って、

$$H \cdot (\nabla \times E) = -\frac{\mu_0}{2} \frac{\partial}{\partial t} (H \cdot H) \quad (4.92)$$

を得る。これらを互いに引き算すると、

$$\nabla \cdot (E \times H) + \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\epsilon_0}{2} E \cdot E + \frac{\mu_0}{2} H \cdot H \right) + E \cdot \frac{\partial P}{\partial t} = 0 \quad (4.93)$$

が得られる。ただしここでベクトル演算に関する公式

$$\nabla \cdot (E \times H) = H \cdot (\nabla \times E) - E \cdot (\nabla \times H) \quad (4.94)$$

を用いた。式 (4.93) は、電磁波のエネルギー密度に関する連続の式である。第1項から、ポインティング・ベクトル (Poynting vector)

$$\boxed{S = E \times H} \quad (4.95)$$

がエネルギーの流れを表すことが分かる。第2項は電磁場のエネルギー密度

$$U = \frac{\epsilon_0}{2} E \cdot E + \frac{\mu_0}{2} H \cdot H \quad (4.96)$$

の時間変化であり、第3項が分極との相互作用による電磁波のエネルギーの増減を表す。式 (4.7) を用いれば、この項は

$$E \cdot J \quad (4.97)$$

とも表される。これは、電場中の電荷が単位時間あたりに得るポテンシャルエネルギーを表している。

いま、電場と分極が一定の角周波数 ω で振動している定常状態を考える。また、電場は十分小さくて、分極は式 (4.36) で表されるように電場に比例するものとする。そのとき、式 (4.93) の第3項は

$$E \cdot \frac{\partial P}{\partial t} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial t} (E \cdot P) \quad (4.98)$$

と書けるので、第2項と合わせて、

$$U' \equiv \frac{\epsilon_0}{2} E \cdot E + \frac{\mu_0}{2} H \cdot H + \frac{1}{2} E \cdot P \quad (4.99)$$

が、媒質中の電磁場と分極が持つエネルギー密度を表すと考えることができる。位置 r における電場の振幅を

$$E(r) = E_0 \exp\left(-\frac{\omega K}{c} z\right) \quad (4.100)$$

とおくと、実数化された電場は

$$E_x = \frac{1}{2} E(r) \exp\left[i\omega\left(\frac{n}{c}z - t\right)\right] + \text{c.c.} \quad (4.101)$$

で与えられる。ここで、式中の c.c. はその前の全ての項の複素共役 (complex conjugate) を表すものとする。同様に分極は

$$P_x = \frac{1}{2} \epsilon_0 (\chi' + i\chi'') E(r) \exp\left[i\omega\left(\frac{n}{c}z - t\right)\right] + \text{c.c.} \quad (4.102)$$

となり、磁場は

$$H_y = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} (n + ik) E(r) \exp\left[i\omega\left(\frac{n}{c}z - t\right)\right] + \text{c.c.} \quad (4.103)$$

となるので、 U' のサイクル平均は、

$$\overline{U'} = \frac{1}{2} \epsilon_0 n^2 |E(r)|^2 \quad (4.104)$$

のように求められる。

電磁波の強度 (intensity) とは単位時間あたりに単位面積を横切る電磁波のエネルギーのことであり, W/cm^2 のような単位で記述される。電磁波の強度は, エネルギーの流れを表すポインティング・ベクトルの大きさに等しい。すなわち, 強度を I とおくと

$$I = |\mathbf{S}| \quad (4.105)$$

となる。強度 I は, 時間によらない項と角周波数 2ω で振動する項とを含む。通常の測定では, 測定器の応答速度は 2ω に比べて非常に遅いので, 電磁波の強度としては通常はサイクル平均されたものをとる。その結果

$$\begin{aligned} \bar{I} &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} n |E(\mathbf{r})|^2 \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c n |E(\mathbf{r})|^2 \end{aligned} \quad (4.106)$$

となり, 電磁波の強度がその位置での電場の振幅の 2 乗に比例することが分かる。上記の電磁場と分極によるエネルギー密度とは,

$$\bar{I} = \bar{U}' \cdot \frac{c}{n} \quad (4.107)$$

の関係にある。これは, 電磁波のエネルギー密度 \bar{U}' に速度 c/n を乗じたものが電磁波の強度であると考えerことでよく理解できる。

次に式 (4.93) の第 3 項の時間平均を求めると,

$$\overline{\mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi'' \omega |E(\mathbf{r})|^2 \quad (4.108)$$

となる。これは, 電磁波と物質内の分極との相互作用によって電磁場から失われる単位時間・単位体積あたりのエネルギーを表す。いま, この電磁波が dz だけ進む間に失う単位体積あたりのエネルギーは, 吸収係数 α を用いて

$$\alpha \bar{U}' dz = \frac{1}{2} \epsilon_0 \alpha n^2 |E(\mathbf{r})|^2 dz \quad (4.109)$$

となる。一方, 電磁波が dz 進むのに時間が $(n/c)dz$ 必要であるから, これは式 (4.108) からは

$$\frac{1}{2} \epsilon_0 \chi'' \omega |E(\mathbf{r})|^2 (n/c) dz \quad (4.110)$$

に等しいはずである。実際, α と χ'' との関係

$$\alpha = \frac{\omega}{nc} \chi'' \quad (4.111)$$

を用いれば, この二つが一致することが分かる。

4.5 吸収の法則

気体や透明媒質中の原子, 分子のような媒質では, 光の吸収は各原子・分子において独立して起こると考えられる。この場合, 吸収係数 α は, 原子・分子の密度, すなわち単位体積あたりの個数に比例する。いま, 原子・分子の密度を N とおき, 吸収係数を

$$\alpha = \sigma_a N \quad (4.112)$$

と書いたとき, 比例係数として現れる σ_a をこの原子・分子の吸収断面積 (absorption cross section) という。吸収断面積は面積の次元を持った量であるが, 光の吸収過程に関して, ひとつひとつの原子・分子が実際に σ_a だけの幾何学的な断面積をもっているとみなすことができる。

いま，この媒質中を距離 z だけ進んだ光の強度を $I(z)$ とおく。光の進行方向に対して垂直な断面積 S を通過するとする。この光が微小な距離 dz を進む間に会おう原子・分子の数は， $NSdz$ である。各原子・分子がそれぞれの周りに σ_a の断面積を持っており，そこにきた光を吸収すると考えると，距離 dz の中の全ての原子・分子が覆う面積は $\sigma_a NSdz$ である。したがって，吸収による光の強度の減少は

$$dI(z) = -\frac{\sigma_a NSdz}{S} I(z) = -N\sigma_a I(z) dz \quad (4.113)$$

と表される。これより，

$$I(z) = I_0 \exp(-N\sigma_a z) \quad (4.114)$$

が得られる。すなわち，式 (4.112) が得られたことになる。

一方，実用的な量として，

$$\frac{I}{I_0} = 10^{-A} \quad (4.115)$$

で定義される A を媒質の吸光度 (absorbance) という。ただし， I_0 が入射光の強度， I が透過光の強度である。 A は，また光学密度 (optical density)，あるいはそれを略して OD とも呼ばれることがある。吸光度は媒質の長さ に比例するというランバート (Lambert) の法則と，吸光度が原子・分子の濃度に比例するというベアー (Beer) の法則が経験的に知られており，それを合わせてランバート・ベアーの法則 (Lambert-Beer law) と呼ばれる。これを式で表すと，

$$\boxed{\frac{I}{I_0} = 10^{-\varepsilon Cl}} \quad (4.116)$$

と書ける。ここで， C は媒質の濃度， l は媒質の長さである。ここに現れる比例定数 ε をモル吸光係数 (molar extinction coefficient) という。通常 C は mol/L の単位で， l は cm 単位で表され，このとき ε の単位は L/(cm·mol) となる。

以上で述べた吸収断面積とモル吸光係数とは，互いに比例している。

4.6 感受率の古典論

電磁波に対する物質の応答の仕方は，巨視的な理論的枠組みの中では電気感受率によって与えられる。ここでは，電気感受率 $\chi(\omega)$ の具体的な形を量子論を用いないモデルで考える。電磁波に最もよく応答するのは，物質内の電子である。ここでは，その電子の運動をバネを用いた模型で表す。すなわち，原子を一つの最外殻電子とその他の部分（原子核と内殻電子）とに分け，それらがバネでつながれていると考える。原子核は電子に比べて非常に質量が大きいので，電子のみの運動を考慮すればよい。電子の運動と電磁波の偏光方向を 1 次元に限ると，電子の運動方程式は

$$\boxed{m \left(\frac{d^2 X}{dt^2} + \Gamma \frac{dX}{dt} + \omega_0^2 X \right) = -eE} \quad (4.117)$$

のように書ける。ここで， X と E は電子の平衡位置からの変位と外部から印加する電磁波の電場であり， m ， e ， ω_0 ， Γ はそれぞれ電子の質量，素電荷，この系の共鳴角周波数，および速度に比例した摩擦力に対応する減衰定数である。このような模型をローレンツ模型 (Lorentz model) という。電場 E が角周波数 ω を持つ単色の電磁波であるとして，それを

$$E = E_0 \exp(-i\omega t) \quad (4.118)$$

とおくと，電子の変位 X も同様に

$$X = X_0 \exp(-i\omega t) \quad (4.119)$$

の形に書けるはずであるので，それを上の式に代入することにより，

$$X = \frac{-eE_0 \exp(-i\omega t)}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma)} \quad (4.120)$$

を得る。原子一個が持つ双極子モーメント p は，

$$p = -eX \quad (4.121)$$

であり，単位体積あたりの原子の個数を N とすると，分極は

$$\begin{aligned} P &= Np = -eNX \\ &= \frac{Ne^2E}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma)} \\ &= \epsilon_0\chi E \end{aligned} \quad (4.122)$$

となるので，電気感受率は，角周波数 ω の関数として

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m (\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma)} \quad (4.123)$$

と求められる。これより，感受率の実部と虚部はそれぞれ，

$$\chi'(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\Gamma^2}, \quad (4.124)$$

$$\chi''(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{\omega\Gamma}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\Gamma^2} \quad (4.125)$$

となる。多くの場合共鳴角周波数に比べて減衰率は十分小さい ($\omega_0 \gg \Gamma$) ので，上式中で $\omega_0 - \omega$ 以外の形であらわれる ω を ω_0 で置き換えると，

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{1/(2\omega_0)}{(\omega_0 - \omega) - i\Gamma/2} \quad (4.126)$$

$$\chi'(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{(\omega_0 - \omega)/(2\omega_0)}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\Gamma/2)^2}, \quad (4.127)$$

$$\chi''(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{\Gamma/(4\omega_0)}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (4.128)$$

が得られる。なお以上の議論では，1次元の調和振動子を用い，電磁波の電場が同じ方向を向いていると仮定したが，3次元の調和振動子であればどのような向きの電場に対しても同じように応答するので，全く同じ結果が得られる。

ここで得られた $\chi''(\omega)$ は， ω の関数として半値全幅 Γ のローレンツ関数 (Lorentzian function) の形をしており，それに対して， $\chi'(\omega)$ はそれを微分したような形になる。それらを図 4.2 に示す。 $\chi''(\omega)$ と $\chi'(\omega)$ は，それぞれ吸収係数と屈折率にほぼ対応しているので，ローレンツ模型によると，吸収線は幅 Γ のローレンツ型となり，屈折率は，吸収線付近では ω に対して減少し，他の周波数領域では増加することが分かる。また，共鳴周波数からかなり離れて吸収が小さくなっている周波数領域でも，屈折率への影響が残っていることが，図から分かる。吸収線付近のこのような吸収係数と屈折率の周波数依存性は，模型によらずほぼ一般的に成り立つものである。媒質の屈折率が周波数に依存して変化することを分散 (dispersion) と呼ぶ。一般に光学媒質の屈折率は，透明領域では ω が増すと大きくなる。これを正常分散 (normal dispersion) と呼ぶ。それに対して， ω が増すと屈折率が小さくなることを異常分散 (anomalous dispersion) と呼ぶが，吸収帯域で異常分散が起こることが分かる。

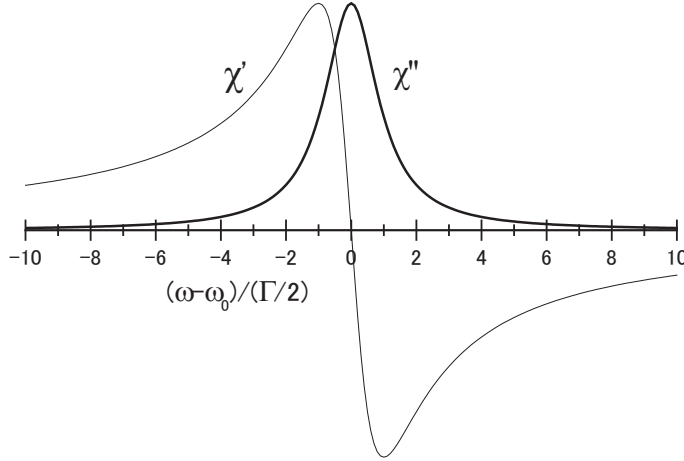


図 4.2: ローレンツ模型による感受率の実部 χ' と虚部 χ''

ここまでは一つの共鳴周波数を持つ物質系の電磁波に対する応答を考えたが、より複雑な物質の電磁波に対する応答も、別々の共鳴周波数を持ついくつかの振動子からの寄与の和として考えることができる。この場合感受率は、

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \sum_j \frac{f_j}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_j} \quad (4.129)$$

のように表すことができる。このとき、 f_j は各振動子の強さの意味で、振動子強度 (oscillator strength) と呼ばれる。

以上で述べたローレンツ模型は古典論であったが、量子力学的に考えても同じ結果が得られることが分かっている。

4.7 スペクトルの広がり

ここまで見てきたように、ローレンツ模型によると物質系の吸収スペクトルは共鳴角周波数 ω_0 を中心にして有限の広がりをもつ。ここで、もう少し一般的にスペクトルの広がりについて考えてみよう。ローレンツ模型は、エネルギー差 $\hbar\omega_0$ を持つ量子力学的な 2 準位系に対応するものである。この 2 準位系が吸収・放出する光子は、光子の角周波数を ω として、そのエネルギー $\hbar\omega$ が $\hbar\omega_0$ と完全に一致する必要があるように考えられる。しかし上で見たように、吸収線は電子の振動の減衰率 Γ 程度の幅を持つ。

発光線幅についても同様に考えることができる。いま、強度が $\exp(-\gamma t)$ に比例して減衰する光のスペクトルがどうなるか考えてみよう。このような光の電場は

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\frac{\gamma t}{2} - i\omega_0 t\right) \quad (t > 0) \quad (4.130)$$

のように表せるので、そのフーリエ変換

$$E(\omega) = \int_0^\infty E(t) \exp(i\omega t) dt \quad (4.131)$$

を用いてこの光のスペクトル (パワースペクトル) を求めると、

$$I(\omega) \propto |E(\omega)|^2 \propto \frac{1}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma/2)^2} \quad (4.132)$$

となる。これは半値全幅 γ を持つローレンツ関数である。

このように、一般に振動子や光電場の振幅が時間的に減衰（位相緩和と呼ぶ）するとき、スペクトルはその減衰時間の逆数（今の場合、 Γ や γ ）程度の幅を持つ。これは、フーリエ変換における時間と周波数の不確定性関係の一例であり、また、量子力学における時間とエネルギーの不確定性関係とも同じものである。このような原因によるスペクトルの広がりを、均一広がり（homogeneous broadening）という。簡単な模型によると、上で見たように均一広がりにはローレンツ型のスペクトル形状を与える。

次に統計的な原因によるスペクトル広がりについて考える。気体中の原子（や分子）は温度に比例した平均運動エネルギーを持っており、その運動の速さや方向は各原子ごとに異なるので、ドップラー効果（Doppler effect）により各原子ごとに共鳴周波数が異なることになる。いま、原子を2準位系とし共鳴角周波数を ω_0 とする。各原子のスペクトルの均一広がり、さしあたりないものとする。速度 v を持つ原子が放つ光を $z = \infty$ から観測したときの角周波数は、非相対論的な極限で

$$\omega = \frac{\omega_0}{1 - v_z/c} \quad (4.133)$$

である。ただしここで、 v_z は v の z 成分である。 v_z はせいぜい 1km/s 程度であるので、非常によい精度で

$$\omega \cong \omega_0 \left(1 + \frac{v_z}{c}\right) \quad (4.134)$$

と近似できる。これから、

$$v_z = \frac{c(\omega_0 - \omega)}{\omega_0} \quad (4.135)$$

が得られる。原子の速度はマクスウェル分布をとるので、温度を T 、原子の質量を m とすると、 v_z の分布は

$$P(v_z) \propto \exp\left(-\frac{mv_z^2}{2k_B T}\right) \quad (4.136)$$

となる。ここに式 (4.135) を代入すると、観測される光の角周波数の分布、すなわち光のスペクトルが

$$I(\omega) \propto \exp\left[-\frac{mc^2}{2k_B T} \frac{(\omega_0 - \omega)^2}{\omega_0^2}\right] \quad (4.137)$$

と求まる。これは ω_0 を中心としたガウス関数（Gaussian function）の形状をしており、その幅は温度の2乗根に比例する。このスペクトル広がりをドップラー広がり（Doppler broadening）という。一個一個の原子の与えるスペクトルが違った位置にピークを持っており、それを合わせることで全体のスペクトルの広がりができるので、このような広がりを総称して不均一広がり（inhomogeneous broadening）という。ルビーの Al_2O_3 結晶中の Cr^{3+} イオンのように、固体の媒質中に少量含まれる原子や分子の吸収・発光線の周波数は、それぞれの原子の周りにおける媒質の影響によりその原子本来のものからシフトする。その影響の大きさは、媒質の結晶などの不完全性により原子ごとにわずかに異なる。これが、全体として観測されるスペクトルに広がりを生じさせる。これも不均一広がりである。原子ごとのばらつきは統計的なものであるから、これから生じるスペクトル広がり、中心極限定理によりほぼガウス型となることが多い。このように、均一広がりにはローレンツ型、不均一広がりにはガウス型になると考えてよい。

半値全幅（FWHM; full width at half maximum）が ω_h のローレンツ関数とガウス関数は、それぞれ

$$L(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\omega_h/2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\omega_h/2)^2}, \quad (4.138)$$

$$G(\omega) = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\omega_h} \exp\left[-(4\ln 2)(\omega - \omega_0)^2/\omega_h^2\right] \quad (4.139)$$

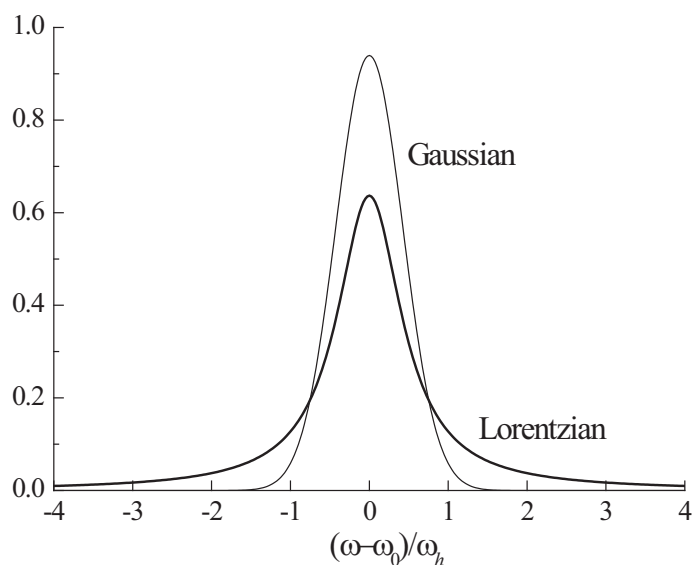


図 4.3: ローレンツ関数とガウス関数

と表され、その形は図 4.3 に示されている。これらはどちらも、積分が 1 になるように規格化されている。また、 \ln は自然対数を表す。

以上の考察では均一広がり・不均一広がりを別々に考えてきたが、実際の物質のスペクトルはこの二つの原因の影響を同時に受けて広がっている。その場合のスペクトル形状は、ローレンツ関数とガウス関数の畳み込み（convolution）であるフォークト（Voigt）関数で表される。

章末問題

1. 2 準位系にほぼ共鳴した弱い光が入射しているとき、2 準位系に生じる振動分極の、入射電場に対する位相を、周波数の関数としてグラフに表せ。

第5章 光と物質との相互作用（量子論）

ここでは光と物質との相互作用を，物質系を量子力学的に，電磁場は古典物理学的に記述して取り扱うやりかたについて，その枠組みを学ぶ。このような取り扱いを半古典的（semi-classical）な取り扱いという。

5.1 定常状態間の遷移

物質系は離散的なエネルギー準位 $W_n (n = 1, 2, 3, \dots)$ を持っているとする。電磁波がないときには，それらはこの系の固有状態である。それを定常状態という。すなわち定常状態は，電磁波との相互作用を考えないハミルトニアン（Hamiltonian） \mathcal{H}_0 の固有状態であり，その波動関数は

$$\Psi_n(\mathbf{r}, t) = \exp(-iW_n t/\hbar) \phi_n(\mathbf{r}) \quad (5.1)$$

と表せる。ただし， $\phi_n(\mathbf{r})$ はハミルトニアン \mathcal{H}_0 の固有関数

$$\mathcal{H}_0 \phi_n(\mathbf{r}) = W_n \phi_n(\mathbf{r}) \quad (5.2)$$

であり，

$$\int \phi_m^*(\mathbf{r}) \phi_n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \delta_{mn} \quad (5.3)$$

のように直交規格化されているとする。

電磁波が入射すると，物質と電磁波との相互作用によって，物質系は異なる定常状態へと遷移する。いま全ハミルトニアンを

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}' \quad (5.4)$$

とする。ただし， \mathcal{H}' は電磁波と物質との相互作用を表すハミルトニアン（相互作用ハミルトニアン）である。物質系の時間に依存する波動関数を $\Psi(\mathbf{r}, t)$ とすると，この系の時間に依存するシュレーディンガー方程式（Schrödinger equation）は，

$$\mathcal{H}\Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (5.5)$$

となる。定常状態間の遷移を考えるために，系の波動関数を各定常状態の波動関数の重ねあわせで

$$\begin{aligned} \Psi(\mathbf{r}, t) &= \sum_n b_n(t) \Psi_n(\mathbf{r}, t) \\ &= \sum_n b_n(t) \exp(-iW_n t/\hbar) \phi_n(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (5.6)$$

のように表す。ここで， $b_n(t)$ が時間とともに変化する各定常状態の振幅を表す。各定常状態に系が存在する確率は $|b_n(t)|^2$ で与えられ，つねに

$$\sum_n |b_n(t)|^2 = 1 \quad (5.7)$$

が成り立つ。式 (5.5) に式 (5.6) を代入して,

$$\begin{aligned}
 (\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}') \sum_n b_n(t) \exp(-iW_n t/\hbar) \phi_n(\mathbf{r}) \\
 = i\hbar \sum_n \frac{\partial b_n(t)}{\partial t} \exp(-iW_n t/\hbar) \phi_n(\mathbf{r}) \\
 + i\hbar \sum_n b_n(t) \left(-\frac{iW_n}{\hbar}\right) \exp(-iW_n t/\hbar) \phi_n(\mathbf{r}) \quad (5.8)
 \end{aligned}$$

を得る。両辺に $\phi_m^*(\mathbf{r})$ を乗じて \mathbf{r} で積分することにより,

$$i\hbar \frac{\partial b_m(t)}{\partial t} = \sum_n b_n(t) \mathcal{H}'_{mn} \exp\left(i \frac{W_m - W_n}{\hbar} t\right) \quad (5.9)$$

が得られる。これが $b_n(t)$ の時間変化を記述する方程式である。ただしここで, \mathcal{H}'_{mn} は \mathcal{H}' の行列要素であり,

$$\mathcal{H}'_{mn} = \int \phi_m^*(\mathbf{r}) \mathcal{H}' \phi_n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (5.10)$$

で与えられる。

5.2 相互作用ハミルトニアン

相互作用ハミルトニアン \mathcal{H}' の具体的な形について考える。電場の中の電子のポテンシャル・エネルギーは,

$$e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E} \quad (5.11)$$

と表される。ただしここで, e は素電荷, \mathbf{r} は電子の位置, \mathbf{E} は電磁波の電場である。この電子が電荷 $+e$ の原子核に束縛されているとすると, この原子が持つ電気双極子モーメント (electric dipole moment) は

$$\boldsymbol{\mu} = -e\mathbf{r} \quad (5.12)$$

であるから, 物質系と電磁波との相互作用によるエネルギーすなわち相互作用ハミルトニアンは,

$$\boxed{\mathcal{H}' = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}} \quad (5.13)$$

と表される。ここでは, 光の電場は電子の空間的な広がりの中で一定であることを仮定しており, その結果上のように, 相互作用が双極子モーメントのみによって表される結果を得た。これを双極子近似 (dipole approximation) という。系の大きさが波長に比べて無視できない場合 (例えば X 線に対する分子の応答や, 半導体中の電子系など) や双極子近似による相互作用が選択則によってゼロになる場合などでは, 電気 4 重極子モーメントや磁気モーメントの寄与を考慮する必要がある。上の相互作用ハミルトニアンに現れる $\boldsymbol{\mu}$ は演算子であり, その行列要素

$$\boldsymbol{\mu}_{mn} \equiv \int \phi_m^*(\mathbf{r}) \boldsymbol{\mu} \phi_n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (m \neq n) \quad (5.14)$$

を一般に遷移双極子モーメント (transition dipole moment) と呼ぶが, これは

$$\boxed{\boldsymbol{\mu}_{mn} = -e \int \phi_m^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} \phi_n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = -e\mathbf{r}_{mn}} \quad (5.15)$$

と表される。式 (5.14) で $m = n$ の場合は, 準位 n の状態の持つ電気双極子モーメントを表し, これを特に遷移双極子モーメントと区別して, 永久双極子モーメントと呼ぶことがある。

いま，水素原子や簡単な分子のような反転対称性のある系を考える。この場合，物質系のハミルトニアン \mathcal{H}_0 の固有関数 $\phi_n(\mathbf{r})$ は，全て決まったパリティを持つように取ることができる。その場合，全ての状態はパリティが偶か奇かのどちらかであり，パリティが偶の状態では

$$\phi_n(-\mathbf{r}) = \phi_n(\mathbf{r}) \quad (5.16)$$

となり，パリティが奇の状態では

$$\phi_n(-\mathbf{r}) = -\phi_n(\mathbf{r}) \quad (5.17)$$

となる。式 (5.15) から，パリティが同じ状態間の遷移双極子モーメントはゼロであることが分かる。のちほど見るように，遷移双極子モーメントがゼロでない状態間でのみ電磁波との相互作用による遷移が起こるので，系に反転対称性が存在する場合，特定の状態間では遷移が起きないことになる。このように，対称性などによって遷移が可能になったり不可能になったりする場合，この規則を選択則 (selection rule) といい，選択側により許される遷移を許容遷移 (allowed transition)，許されない遷移を禁制遷移 (forbidden transition) という。

5.3 2 準位系

いま最も単純な場合として，物質系が2準位からなる場合を考える。二つの準位を $n = 1, 2$ で表し，入射する電磁波の角周波数を ω とする。特に， ω が2準位の間のエネルギー差 $\hbar\omega_0$ にほぼ共鳴しているとする。すなわち

$$\hbar\omega \cong W_2 - W_1 \equiv \hbar\omega_0 \quad (5.18)$$

とする。一般に，多準位系であっても入射電磁波と共鳴している準位が他にない場合は共鳴している二つの準位だけを考えればよく，物質系を2準位系と考えることはよく行われる。いま， $\mu_{11} = \mu_{22} = 0$ とする。(反転対称性のある系では，これは常に成り立つ。) また一般に

$$\mu_{21} = \mu_{12}^* \quad (5.19)$$

が成り立つが，波動関数の位相を適当に取することで $\mu_{12} = \mu_{21}$ とすることができる。電磁波の電場を

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \cos \omega t \quad (5.20)$$

とおくと，式 (5.9) から

$$\frac{\partial b_1(t)}{\partial t} = i \cdot \frac{\mu_{12} \cdot \mathbf{E}_0}{2\hbar} b_2(t) \left[e^{-i(\omega_0 - \omega)t} + e^{-i(\omega_0 + \omega)t} \right] \quad (5.21)$$

$$\frac{\partial b_2(t)}{\partial t} = i \cdot \frac{\mu_{12} \cdot \mathbf{E}_0}{2\hbar} b_1(t) \left[e^{i(\omega_0 - \omega)t} + e^{i(\omega_0 + \omega)t} \right] \quad (5.22)$$

が得られる。これらの式で，右辺の $\exp[\pm i(\omega_0 + \omega)t]$ の項は $\exp[\pm i(\omega_0 - \omega)t]$ の項に比べて激しく振動する。したがって，時間積分の結果前者はほとんど消えてしまうので，これを無視することができる。これを回転波近似 (rotating-wave approximation) という。それは，電磁波の電場

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \cos \omega t = \frac{1}{2} \mathbf{E}_0 [\exp(i\omega t) + \exp(-i\omega t)] \quad (5.23)$$

を，

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2} \mathbf{E}_0 \exp(i\omega t) \quad (5.24)$$

または，

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2} \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t) \quad (5.25)$$

のように，角周波数 ω または $-\omega$ で複素平面上を回転する波で置き換えているからである。回転波近似の結果，上式は

$$\frac{\partial b_1(t)}{\partial t} = i\frac{X}{2}b_2(t)\exp(-i\Delta t) \quad (5.26)$$

$$\frac{\partial b_2(t)}{\partial t} = i\frac{X}{2}b_1(t)\exp(i\Delta t) \quad (5.27)$$

のように簡単になる。ただしここで，

$$\Delta \equiv \omega_0 - \omega \quad (5.28)$$

$$X \equiv \frac{\boldsymbol{\mu}_{12} \cdot \boldsymbol{E}_0}{\hbar} \quad (5.29)$$

と定義した。

いま，初期条件 $b_1(0) = 1$, $b_2(0) = 0$ のもとでこれを解こう。式 (5.27) を時間 t で微分し，式 (5.26) を代入すると， $b_2(t)$ に関する 2 階の微分方程式

$$\frac{\partial^2 b_2(t)}{\partial t^2} - i\Delta \frac{\partial b_2(t)}{\partial t} + \frac{X^2}{4}b_2(t) = 0 \quad (5.30)$$

を得る。この方程式の解が

$$b_2(t) = \exp(i\lambda t) \quad (5.31)$$

の形で表されるとき，これを方程式に代入すると，

$$\lambda = \frac{1}{2}(\Delta \pm \Omega) \quad (5.32)$$

であればよいことが分かる。ただしここで， Ω は

$$\Omega \equiv \sqrt{\Delta^2 + X^2} \quad (5.33)$$

で定義され，ラビ角周波数（Rabi angular frequency）と呼ばれる。したがって，式 (5.30) の一般解は

$$b_2(t) = A \exp\left[\frac{i}{2}(\Delta + \Omega)t\right] + B \exp\left[\frac{i}{2}(\Delta - \Omega)t\right] \quad (5.34)$$

で与えられることが分かる。ここで， A と B は任意の定数である。これに初期条件を適用することにより，

$$b_1(t) = \exp\left(-i\frac{\Delta}{2}t\right)\left[\cos\left(\frac{\Omega}{2}t\right) + i\frac{\Delta}{\Omega}\sin\left(\frac{\Omega}{2}t\right)\right] \quad (5.35)$$

$$b_2(t) = i\frac{X}{\Omega}\exp\left(i\frac{\Delta}{2}t\right)\sin\left(\frac{\Omega}{2}t\right) \quad (5.36)$$

が得られる。系が準位 2 にある確率は，

$$|b_2(t)|^2 = \frac{X^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) \quad (5.37)$$

となる。すなわち，これは時刻 0 で 0 からスタートし，時間とともに角周波数 $\Omega/2$ で振動を繰り返す。最大値は X^2/Ω^2 であり，初めにこの値をとる時刻は π/Ω である。特に電磁波と 2 準位系が完全に共鳴しているとき（ $\Delta = 0$ ）には， $\Omega = X$ なので，系は完全に準位 2 に遷移する。

以上の考察の結果，物質系による光の吸収と放出が交互に起こり，それとともに系が準位 2 にある確率が時間とともに振動を繰り返すという結果が得られた。この現象をラビ振動（Rabi oscillation）という。このような現象は，系の波動関数の位相が長い時間の間に乱されないままである場合のみ起

こゝで、一般にコヒーレント光学過程 (coherent optical process) と呼ばれる現象の一例である。実際には、多くの場合は非常に短時間 (π/Ω より短い時間) に位相が乱されてしまう。これを位相緩和 (phase relaxation, dephasing) という。一般に、このような現象をコヒーレンス (coherence) が失われるともいう。その原因は、周りの原子との衝突、固体の格子振動との相互作用、自然放出などである。短時間にコヒーレンスが失われると、上で見たような占有確率の振動は起きず、準位 2 の占有確率は単調に増加したのち一定値に達する。

位相の乱れた系は量子力学的には混合状態となり、ここでの扱いのように系の状態を一つの波動関数では表すことはできない。($\Psi(\mathbf{r}, t)$ は、多数の固有状態の波動関数の線形結合で表されていて一つの波動関数であることに変わりはない。) 位相の乱れ (位相緩和) や自然放出などによる占有確率の変化 (エネルギー緩和) といった緩和を取り込んだ理論的取り扱い、波動関数に代わって密度行列 (density matrix) を用いることで可能となる。

5.4 振動分極

物質内に生じる分極は、原子・分子に生じる電気双極子モーメント p に単位体積あたりの個数 N を乗じることにより得られる。電気双極子モーメントの期待値は、

$$\begin{aligned} p &= \langle \mu \rangle = -e \langle r \rangle \\ &= -e \int \Psi^*(\mathbf{r}, t) \mathbf{r} \Psi(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} \end{aligned} \quad (5.38)$$

で与えられる。反転対称性のある系では

$$\int \Psi_n^*(\mathbf{r}, t) \mathbf{r} \Psi_n(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} = 0 \quad (5.39)$$

であるから、物質系が特定の準位のみに存在しているときには、分極はゼロとなる。また、反転対称性のない系では特定の準位のみに系が分布しているときには、分極は時間に依存しない定数となる。さていま、反転対称性のある 2 準位系に戻って、系の波動関数が準位 1 と準位 2 との重ねあわせで、

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = b_1 \Psi_1(\mathbf{r}, t) + b_2 \Psi_2(\mathbf{r}, t) \quad (5.40)$$

と表されるとする。このとき分極の期待値は、

$$\begin{aligned} Np &= -Ne \int \Psi^*(\mathbf{r}, t) \mathbf{r} \Psi(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} \\ &= -Ne \int \left[b_1^* e^{iW_1 t/\hbar} \phi_1^*(\mathbf{r}) + b_2^* e^{iW_2 t/\hbar} \phi_2^*(\mathbf{r}) \right] \mathbf{r} \\ &\quad \times \left[b_1 e^{-iW_1 t/\hbar} \phi_1(\mathbf{r}) + b_2 e^{-iW_2 t/\hbar} \phi_2(\mathbf{r}) \right] d\mathbf{r} \\ &= N\mu_{12} \left[b_1^* b_2 e^{-i(W_2 - W_1)t/\hbar} + b_1 b_2^* e^{i(W_2 - W_1)t/\hbar} \right] \\ &= 2N\mu_{12} \text{Re} \left\{ b_1^* b_2 e^{-i(W_2 - W_1)t/\hbar} \right\} \end{aligned} \quad (5.41)$$

となる。これから、系の波動関数が準位 1 と準位 2 の重ねあわせにあるときにのみ分極が存在すること、またその分極は角周波数 $\omega_0 = (W_2 - W_1)/\hbar$ で振動することが分かる。

5.5 遷移確率

ここでは、波動関数を用いた取り扱いの範囲で、吸収・放出の遷移確率を求めてみよう。いま、光と物質との相互作用があまり小さくなく系の状態は初期条件から大きく変化しないものとする。す

ると、式 (5.22) で $b_1(t) = 1$ として積分することにより、

$$\begin{aligned} b_2(t) &= i\frac{X}{2} \int_0^t \left[e^{i(\omega_0 - \omega)t'} + e^{i(\omega_0 + \omega)t'} \right] dt' \\ &= \frac{X}{2} \left[\frac{e^{i(\omega_0 - \omega)t} - 1}{\omega_0 - \omega} + \frac{e^{i(\omega_0 + \omega)t} - 1}{\omega_0 + \omega} \right] \end{aligned} \quad (5.42)$$

が得られる。共鳴条件より $\omega_0 \approx \omega$ であるので、第2項は無視できる。これは、先ほど述べた回転波近似に相当している。その結果、準位2の占有確率は

$$|b_2(t)|^2 = \frac{X^2 \sin^2[(\omega_0 - \omega)t/2]}{(\omega_0 - \omega)^2} \quad (5.43)$$

となる。これを ω の関数として考えると、 $\omega = \omega_0$ において最大値 $X^2 t^2 / 4$ をとり、その付近 $|\omega_0 - \omega| < 2\pi/t$ 程度において大きな値をとる。いま $\omega_0 - \omega$ に広がりがあるとすると、準位2の占有確率は $|b_2(t)|^2$ を ω で積分したものに比例すると考えられるが、最大値は t^2 に比例し幅は $1/t$ に比例するので、積分した面積は時間 t に比例する。すなわち、時間あたりの遷移確率が定義できることになる。

現実の系では、多くの場合緩和などによって共鳴角周波数 ω_0 自体が広がりをもっているのであるが、今の理論的な取り扱いではそれは取り入れられない。その代わりに、入射電磁波の角周波数 ω が ω_0 の付近で $\delta\omega$ 程度の広がりをもって分布していると考えよう。このとき電磁波の角周波数あたりのエネルギー密度 $U(\omega)$ は、

$$\frac{\epsilon_0 E_0^2}{2} = \int_{\omega_0 - \delta\omega}^{\omega_0 + \delta\omega} U(\omega) d\omega \quad (5.44)$$

のように電場振幅と対応させることができる。また

$$X = \frac{\mu_{12} \cdot E_0}{\hbar} \quad (5.45)$$

であったが、いま物質系の原子や分子などの方向はそれぞれにランダムであるとして方向に関する平均を取ることににより、

$$\begin{aligned} X^2 &= \frac{1}{\hbar^2} \langle |\mu_{12} \cdot E_0|^2 \rangle \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \langle \mu_{12}^2 E_0^2 \cos^2 \theta \rangle \\ &= \frac{\mu_{12}^2 E_0^2}{3\hbar^2} \\ &= \frac{2\mu_{12}^2}{3\epsilon_0 \hbar^2} \int_{\omega_0 - \delta\omega}^{\omega_0 + \delta\omega} U(\omega) d\omega \end{aligned} \quad (5.46)$$

が得られる。これより、準位2の占有確率は、

$$|b_2(t)|^2 = \frac{2\mu_{12}^2}{3\epsilon_0 \hbar^2} \int_{\omega_0 - \delta\omega}^{\omega_0 + \delta\omega} U(\omega) \frac{\sin^2[(\omega_0 - \omega)t/2]}{(\omega_0 - \omega)^2} d\omega \quad (5.47)$$

と表される。ここで

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sin^2[(\omega_0 - \omega)t/2]}{(\omega_0 - \omega)^2} d\omega = \frac{\pi}{2} t \quad (5.48)$$

であるので、この被積分関数が大きな値を持つ $|\omega_0 - \omega| < 2\pi/t$ に比べて光のスペクトル $U(\omega)$ の広がりが大きくなるように十分大きな時刻 t をとることにより、式 (5.47) の $U(\omega)$ を積分の外に出すことができ、

$$\begin{aligned} |b_2(t)|^2 &= \frac{2\mu_{12}^2}{3\epsilon_0 \hbar^2} U(\omega_0) \int_{\omega_0 - \delta\omega}^{\omega_0 + \delta\omega} \frac{\sin^2[(\omega_0 - \omega)t/2]}{(\omega_0 - \omega)^2} d\omega \\ &= \frac{\pi\mu_{12}^2}{3\epsilon_0 \hbar^2} U(\omega_0) \cdot t \end{aligned} \quad (5.49)$$

が得られる。したがって、単位時間あたりの遷移確率は

$$w_{12} = \frac{d}{dt} |b_2(t)|^2 = \frac{\pi \mu_{12}^2}{3 \epsilon_0 \hbar^2} U(\omega_0) \quad (5.50)$$

のようになり、 $U(\omega_0)$ に比例する。この式における $U(\omega_0)$ の比例係数が、以前に議論したアインシュタインの B 係数であるので、それが

$$B = \frac{\pi \mu_{12}^2}{3 \epsilon_0 \hbar^2} \quad (5.51)$$

と求まったことになる。また、初期条件を $b_1(0) = 0$, $b_2(0) = 1$ とすることにより、同じようにして系が初めに準位 2 にいたときの準位 1 への遷移確率 w_{21} が求められ、それは w_{12} と等しくなる。すなわち、準位 2 からの誘導放出の確率は準位 1 からの吸収の確率と等しい ($B_{12} = B_{21}$) ことが導き出された。ここで、上の議論では物質系の方向が乱雑であるとして方向に関する平均を求めたが、より一般的には遷移双極子モーメントの光の電場の方向の成分 μ_{\parallel} の平均値を用いて、

$$B = \frac{\pi \langle \mu_{\parallel}^2 \rangle}{\epsilon_0 \hbar^2} \quad (5.52)$$

と表すことができる。ただし、特定の方向に遷移双極子モーメントを有する物質が乱雑に配向しているときには、

$$\langle \mu_{\parallel}^2 \rangle = \frac{1}{3} \mu_{12}^2 \quad (5.53)$$

である。

アインシュタインの A 係数と B 係数との関係を表す式 (2.51) を用いると、アインシュタインの A 係数が

$$A = \frac{\mu_{12}^2 \omega^3}{3 \pi \epsilon_0 \hbar c^3} \quad (5.54)$$

と求められる。のちほど述べるように、

$$f \equiv \frac{2 m \omega \mu_{12}^2}{3 e^2 \hbar} \quad (5.55)$$

で定義される振動子強度は、許容遷移では 1 のオーダーの値をとる。上記の A 係数は自然放出のレートを表すので、その逆数である自然寿命は

$$\begin{aligned} \tau_r &= \frac{2 \pi c^3 \epsilon_0 m}{e^2} \cdot \frac{1}{f \omega^2} \\ &= 1.5 \cdot \frac{1}{f \bar{\nu}^2} \cdot \frac{s}{\text{cm}^2} \end{aligned} \quad (5.56)$$

と表されることが分かる。ここで

$$\bar{\nu} = \frac{\omega}{2 \pi c} \quad (5.57)$$

は電磁波の波数である。従って、許容遷移では自然寿命は遷移の振動数の 2 乗にほぼ反比例し、波長 500 nm、波数 $20,000 \text{ cm}^{-1}$ の可視光では $\tau_r = 3.75 \text{ ns}/f$ となる。

次に、緩和の影響についても考えてみよう。先にも述べたように、緩和のある系の正しい取り扱いには密度行列によらなければならないが、ここでは現象論的に緩和の影響を取り入れてみる。上記の系において、入射光以外の何らかの原因で上準位の波動関数の振幅 $b_2(t)$ が減衰していくものとする。自然放出もその原因の一つである。古典論的な扱いにおけるローレンツ模型と対応させるためその減衰率を $\gamma/2$ とすると、上準位の占有確率 $|b_2(t)|^2$ は減衰率 γ で減衰する。その項を式 (5.27) に付け加え $b_1(t) = 1$ とすると、

$$\frac{db_2(t)}{dt} = i \frac{X}{2} e^{i \Delta t} - \frac{\gamma}{2} b_2(t) \quad (5.58)$$

となる。これを積分して、

$$\begin{aligned} b_2(t) &= i \frac{X}{2} \int_{-\infty}^t e^{i\Delta t'} e^{-\gamma(t-t')/2} dt' \\ &= i \frac{X}{2} \frac{e^{i(\omega_0 - \omega)t}}{i(\omega_0 - \omega) + \gamma/2} \end{aligned} \quad (5.59)$$

を得る。ここでは、緩和により常に $b_1(t)$ は初期値の 1 に近い値をとるので、積分は $-\infty$ から行うことができる。いまの考察では系は定常状態にあるので、上準位の占有確率は時間的に一定である。一方、緩和による占有確率の減衰は光が入射しないときの減衰率

$$\begin{aligned} \frac{d|b_2(t)|^2}{dt} &= \frac{db_2^*(t)}{dt} b_2(t) + b_2^*(t) \frac{db_2(t)}{dt} \\ &= -\gamma |b_2(t)|^2 \end{aligned} \quad (5.60)$$

に常に等しい。定常状態ではこれにつり合うだけの吸収遷移が同時に起こっているはずであるから、単位時間あたりの遷移確率は

$$w_{12} = \gamma |b_2(t)|^2 = \frac{X^2}{4} \frac{\gamma}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma/2)^2} \quad (5.61)$$

となる。式 (5.46) を用いて、

$$w_{12} = \frac{\pi \mu_{12}^2}{3\epsilon_0 \hbar^2} \int_{\omega_0 - \delta\omega}^{\omega_0 + \delta\omega} \frac{\gamma/2\pi}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma/2)^2} U(\omega) d\omega \quad (5.62)$$

が得られる。ここで得られた吸収のスペクトル形状はローレンツ模型によるものと等しく、幅 γ のローレンツ関数となる。また特に吸収スペクトル幅 γ が入射光の周波数分布の幅 $\delta\omega$ に比べて十分に狭い場合は、公式

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\gamma/2\pi}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma/2)^2} d\omega = 1 \quad (5.63)$$

を用いて、

$$w_{12} = \frac{\pi \mu_{12}^2}{3\epsilon_0 \hbar^2} U(\omega_0) \quad (5.64)$$

が得られる。この結果は、緩和を考慮しない場合に得られたものと一致する。

また、式 (5.59) より振動分極を求めると

$$\mathbf{p} = \text{Re} \left\{ \frac{\mu_{12} X}{(\omega_0 - \omega) - i\gamma/2} \exp(-i\omega t) \right\} \quad (5.65)$$

となるので、電気感受率は

$$\chi(\omega) = \frac{N \langle \mu_{\parallel}^2 \rangle}{\epsilon_0 \hbar} \frac{1}{(\omega_0 - \omega) - i\gamma/2} \quad (5.66)$$

と得られる。ただし、 N は単位体積あたりの物質系の数である。

第6章 非線形光学

6.1 序

電磁波に対する物質の応答は，巨視的な取り扱いにおいては，マクスウェル方程式に現れる分極 P が電磁波の電場 E に対してどのような依存性を持つかによって決定される。電場が十分弱い場合には分極は電場に比例し，その比例関係は

$$P = \epsilon_0 \chi E \quad (6.1)$$

のように電気感受率 χ で表された。この範囲で起こる光学現象を扱うのを線形光学 (linear optics) という。物質の線形光学的性質は (線形な) 電気感受率によって表される。光の反射，屈折，吸収，回折，散乱などの通常の光学現象は，全て線形光学の範囲で理解できる。それに対して，レーザーを用いると大きなエネルギーの電磁場を狭い空間・時間に集中することができるので，非常に強い電場を発生することができる。電場 E が大きくなると，一般にはこのような比例関係からずれてくる。そのような効果を総称して，非線形光学 (nonlinear optics) 効果といい，そのとき起こる現象を非線形光学現象という。非線形光学効果を用いることにより，光の波長変換や光による物質の光学的性質の制御などが実現できる。非線形光学現象は，レーザー光を用いることにより初めて実現された。

6.2 非線形分極と非線形光学感受率

電場と分極との関係を電場のべきで展開して，

$$P = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots] \quad (6.2)$$

$$= P^L + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots \quad (6.3)$$

$$= P^L + P^{NL} \quad (6.4)$$

のように書こう。ここで， $\chi^{(1)} = \chi$ は線形な感受率 (電気感受率) であり，

$$P^L = \epsilon_0 \chi^{(1)} E \quad (6.5)$$

は線形分極と呼ばれる。それに対して，

$$P^{NL} = P^{(2)} + P^{(3)} + \dots \quad (6.6)$$

が非線形分極と呼ばれる。

$$P^{(n)} = \epsilon_0 \chi^{(n)} E^n \quad (6.7)$$

は n 次 (n -th order) の非線形分極と呼ばれ， $\chi^{(n)}$ は n 次の非線形感受率 (nonlinear susceptibility) と呼ばれる。これらは，一般には複数のベクトル量の間を関係付ける量で $(n+1)$ 階のテンソルで表されるが，さしあたり簡単のために，電場や分極がベクトルであることはあらわには考慮せず，感受率をスカラー量として扱うことにする。

また，一般には $\chi^{(n)}$ は入射光の周波数の関数であり，線形な感受率と同様に電場と分極の各周波数成分に対する比例係数として定義されるものであるが，電場や分極を周波数成分で表わす表式は一意

的ではないので、周波数の関数としての $\chi^{(n)}$ の一般的な定義には、きちんとした手順が必要である。ただし、どのような表式を用いる場合にも、周波数依存性がない条件では、式 (6.7) に一致するように $\chi^{(n)}$ を定義する必要がある。ここでは周波数依存性はとりえず無視して、式 (6.2) のように表すこととする。

ここで、対称性に由来する非線形感受率に対する制限について考えておく。いま、反転対称性を有する媒質を考える。真空、空気、ガラス、水などの一様媒質や、NaCl や Si などの多くの結晶が、反転対称性を持つ。このような媒質では、 r を $-r$ に変える操作に対して $\chi^{(n)}$ は不変である。それに対して、式 (6.7) の中の $P^{(n)}$ 、 E はどちらも通常のベクトルであるから、反転操作に対して $P^{(n)} \rightarrow -P^{(n)}$ 、 $E \rightarrow -E$ のように変化する。従って、反転操作によって式 (6.7) は

$$-P^{(n)} = (-1)^n \epsilon_0 \chi^{(n)} E^n \quad (6.8)$$

となる。これとものと式を比べることにより、反転対称性のある媒質においては、偶数の n に対して $\chi^{(n)} = 0$ となることが分かる。すなわち、最低次の非線形光学効果である 2 次の非線形光学効果が生じるのは、反転対称性のない系でのみであり、反転対称性のある系においては、3 次の非線形光学効果が、最低次となる。したがって、2 次と 3 次の非線形光学効果は、どちらも重要であり、以下に詳しく述べる。それに対し、4 次以上の非線形光学効果が重要になるケースは少ない。

6.2.1 2 次の非線形分極

はじめに、2 次の非線形分極について調べよう。2 次の非線形分極は、2 次の非線形感受率 $\chi^{(2)}$ を用いて

$$P^{NL} = P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 \quad (6.9)$$

と表される。いま、入射電場 E が角周波数 ω_1 と ω_2 を持つ電場とからなるとすると、

$$E(t) = \left[\frac{1}{2} E^{(\omega_1)} \exp(-i\omega_1 t) + \text{c.c.} \right] + \left[\frac{1}{2} E^{(\omega_2)} \exp(-i\omega_2 t) + \text{c.c.} \right] \quad (6.10)$$

のように表すことができる。式 (6.9) にこれを代入すると、

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} \left\{ \left[\left[E^{(\omega_1)} \right]^2 \exp(-2i\omega_1 t) + \text{c.c.} \right] + \left[\left[E^{(\omega_2)} \right]^2 \exp(-2i\omega_2 t) + \text{c.c.} \right] \right. \\ \left. + 2E^{(\omega_1)} \left[E^{(\omega_1)} \right]^* + 2E^{(\omega_2)} \left[E^{(\omega_2)} \right]^* \right. \\ \left. + \left[2E^{(\omega_1)} E^{(\omega_2)} \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) + \text{c.c.} \right] + \left[2E^{(\omega_1)} \left[E^{(\omega_2)} \right]^* \exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t) + \text{c.c.} \right] \right\} \quad (6.11) \end{aligned}$$

となる。これから分かるように、非線形分極は ω_1 と ω_2 との和や差の角周波数を持ついくつかの周波数成分からなる。それらから、分極と同じ角周波数を持つ電場が発生する。

線形な誘電率や感受率が一般に周波数の関数であるのと同じように、非線形感受率も一般には周波数の関数である。上記のような各非線形光学過程に対応して、それぞれ非線形感受率も異なるので、それを明示する場合は、たとえば、

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t) = \left[\frac{1}{2} P^{(2\omega_1)} \exp(-2i\omega_1 t) + \text{c.c.} \right] + \left[\frac{1}{2} P^{(2\omega_2)} \exp(-2i\omega_2 t) + \text{c.c.} \right] \\ + \left[\frac{1}{2} P^{(\omega_1 + \omega_2)} \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) + \text{c.c.} \right] \\ + \left[\frac{1}{2} P^{(\omega_1 - \omega_2)} \exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t) + \text{c.c.} \right] + P^{(0)} \quad (6.12) \end{aligned}$$

$$P^{(2\omega_1)} = \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(2\omega_1; \omega_1, \omega_1) [E^{(\omega_1)}]^2 \quad (6.13)$$

$$P^{(2\omega_2)} = \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(2\omega_2; \omega_2, \omega_2) [E^{(\omega_2)}]^2 \quad (6.14)$$

$$P^{(\omega_1+\omega_2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) E^{(\omega_1)} E^{(\omega_2)} \quad (6.15)$$

$$P^{(\omega_1-\omega_2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2) E^{(\omega_1)} [E^{(\omega_2)}]^* \quad (6.16)$$

$$P^{(0)} = \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(0; \omega_1, -\omega_1) E^{(\omega_1)} [E^{(\omega_1)}]^* + \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(0; \omega_2, -\omega_2) E^{(\omega_2)} [E^{(\omega_2)}]^* \quad (6.17)$$

のように表す。¹

上では、電場や分極の位置依存性については考慮しなかった。多くの場合、線形および非線形分極は、光の波長よりは十分小さな領域における微視的な物理的機構によって決定されており、各位置における分極は、その場所における入射電場のみにによって決定される。一様な媒質では、光の電場は、入射光の進行方向などによって決まる波数ベクトルをもって伝搬しており、その結果、分極も決まった波数ベクトルを持つことになる。

いま、式 (6.10) において角周波数 ω_1, ω_2 の光がそれぞれ波数 k_1, k_2 を持って伝搬しているとする、光電場は位置依存性を含めて、

$$E(\mathbf{r}, t) = \left[\frac{1}{2} E^{(\omega_1)} \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)] + \text{c.c.} \right] + \left[\frac{1}{2} E^{(\omega_2)} \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)] + \text{c.c.} \right] \quad (6.18)$$

と表わされる。すると式 (6.13) 以下の非線形分極の振幅はそれぞれ、

$$P^{(2\omega_1)}(\mathbf{r}) = \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(2\omega_1; \omega_1, \omega_1) [E^{(\omega_1)}]^2 \exp(2i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}) \quad (6.19)$$

$$P^{(2\omega_2)}(\mathbf{r}) = \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(2\omega_2; \omega_2, \omega_2) [E^{(\omega_2)}]^2 \exp(2i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}) \quad (6.20)$$

$$P^{(\omega_1+\omega_2)}(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) E^{(\omega_1)} E^{(\omega_2)} \exp[i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}] \quad (6.21)$$

$$P^{(\omega_1-\omega_2)}(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2) E^{(\omega_1)} [E^{(\omega_2)}]^* \exp[i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}] \quad (6.22)$$

$$P^{(0)}(\mathbf{r}) = \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(0; \omega_1, -\omega_1) E^{(\omega_1)} [E^{(\omega_1)}]^* + \frac{\epsilon_0}{2} \chi^{(2)}(0; \omega_2, -\omega_2) E^{(\omega_2)} [E^{(\omega_2)}]^* \quad (6.23)$$

のようになり、それぞれ決まった波数ベクトルを持つことが分かる。ここで、 $\chi^{(2)}$ の引数に入る角周波数 (“;” の右側のもの) に応じて、そのあとに来る電場と波数が自動的に決まっていることに注意せよ。すなわち ω_n に対して $E^{(\omega_n)} \exp(i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r})$ が、 $-\omega_n$ に対して $[E^{(\omega_n)}]^* \exp(-i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r})$ が、乗ぜられる。

6.2.2 3 次の非線形分極

次に、3 次の非線形分極の表式について考えよう。3 次の非線形分極 $P^{(3)}$ は、

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t)^3 \quad (6.24)$$

と表される。いま、入射電場 E が $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ の 3 つの角周波数を持つ電場からなるとすると、

$$E(t) = \frac{1}{2} E^{(\omega_1)} \exp(-i\omega_1 t) + \frac{1}{2} E^{(\omega_2)} \exp(-i\omega_2 t) + \frac{1}{2} E^{(\omega_3)} \exp(-i\omega_3 t) + \text{c.c.} \quad (6.25)$$

のように表すことができる。式 (6.24) にこれを代入することで得られる非線形分極には、(正負の周波数を別に数えると) 44 の異なる周波数成分が含まれる。それらは、以下に挙げたものとそれらの正負

¹ 非線形感受率の表し方として、たとえば $\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2)$ のかわりに $\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2)$ のように、1 番目の周波数の符号を変えて、引数の周波数を総和がゼロにするようにする表記法もある。

を反転させたものである。

$$3\omega_1, 3\omega_2, 3\omega_3, \omega_1, \omega_2, \omega_3, 2\omega_1 \pm \omega_2, 2\omega_1 \pm \omega_3, 2\omega_2 \pm \omega_1, 2\omega_2 \pm \omega_3, 2\omega_3 \pm \omega_1, 2\omega_3 \pm \omega_2, \\ \omega_1 + \omega_2 + \omega_3, \omega_1 + \omega_2 - \omega_3, \omega_1 - \omega_2 + \omega_3, -\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \quad (6.26)$$

非線形分極を

$$P^{(3)}(t) = \frac{1}{2} \sum_n P^{(\omega_n)} \exp(-i\omega_n t) + \text{c.c.} \quad (6.27)$$

と書くと、非線形分極の各周波数成分の複素振幅は、

$$P^{(3\omega_1)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} [E^{(\omega_1)}]^3, \\ P^{(\omega_1)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} \left\{ 3 [E^{(\omega_1)}]^2 [E^{(\omega_1)}]^* + 6 E^{(\omega_1)} E^{(\omega_2)} [E^{(\omega_2)}]^* + 6 E^{(\omega_1)} E^{(\omega_3)} [E^{(\omega_3)}]^* \right\}, \\ P^{(2\omega_1+\omega_2)} = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} [E^{(\omega_1)}]^2 E^{(\omega_2)}, \quad P^{(2\omega_1-\omega_2)} = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} [E^{(\omega_1)}]^2 [E^{(\omega_2)}]^*, \\ P^{(\omega_1+\omega_2+\omega_3)} = \frac{6}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} E^{(\omega_1)} E^{(\omega_2)} E^{(\omega_3)}, \quad P^{(\omega_1+\omega_2-\omega_3)} = \frac{6}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} E^{(\omega_1)} E^{(\omega_2)} [E^{(\omega_3)}]^* \quad (6.28)$$

および、これらに対して $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ を並び替えることで得られるものである。

$$E^{(-\omega)} = [E^{(\omega)}]^* \quad (6.29)$$

であることを用いると、これらは、まとめて

$$P^{(\omega_i+\omega_j+\omega_k)} = \frac{K}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} E^{(\omega_i)} E^{(\omega_j)} E^{(\omega_k)} \quad (6.30)$$

のように表わすことができる。あるいは、 $\chi^{(3)}$ の周波数依存性を考慮すると、

$$P^{(\omega_i+\omega_j+\omega_k)} = \frac{K}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_i + \omega_j + \omega_k; \omega_i, \omega_j, \omega_k) E^{(\omega_i)} E^{(\omega_j)} E^{(\omega_k)} \quad (6.31)$$

となる。ただし、ここで $\omega_i, \omega_j, \omega_k$ は、それぞれ $\pm\omega_1, \pm\omega_2, \pm\omega_3$ のうちのどれかである。また、 K は縮退因子 (degeneracy factor) といわれ、電場の周波数の組 $(\omega_i, \omega_j, \omega_k)$ に対する、異なる並び替えの数を表わす。

また、電場の位置依存性を明示して、

$$E(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} E^{(\omega_1)} \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)] + \frac{1}{2} E^{(\omega_2)} \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)] \\ + \frac{1}{2} E^{(\omega_3)} \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)] + \text{c.c.} \quad (6.32)$$

と表わすと、非線形分極の各周波数成分の振幅は

$$P^{(\omega_i+\omega_j+\omega_k)}(\mathbf{r}) = \frac{K}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_i + \omega_j + \omega_k; \omega_i, \omega_j, \omega_k) E^{(\omega_i)} E^{(\omega_j)} E^{(\omega_k)} \exp[i(\mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j + \mathbf{k}_k) \cdot \mathbf{r}] \quad (6.33)$$

と表わされる。ただし \mathbf{k}_m ($m = i, j, k$) は、 ω_m が ω_1, ω_2 、または ω_3 の場合は、それぞれ $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3$ を表わし、 ω_m が $-\omega_1, -\omega_2$ 、または $-\omega_3$ の場合は、それぞれ $-\mathbf{k}_1, -\mathbf{k}_2, -\mathbf{k}_3$ を表わすものとする。

6.3 非線形光伝搬

マクスウェル方程式を用いて、非線形光学媒質における電磁波の伝搬の様子について調べてみよう。
マクスウェル方程式

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (6.34)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (6.35)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (6.36)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (6.37)$$

において、

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL} \\ &= \epsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}^{NL} \end{aligned} \quad (6.38)$$

とする。式 (6.34) の回転をとって、式 (6.35)、式 (6.36) とベクトル演算に関する恒等式 $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}$ を用いると、

$$\boxed{\nabla^2 \mathbf{E} = \epsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{NL}}{\partial t^2}} \quad (6.39)$$

が得られる。これが非線形な分極が存在するときの電磁波の伝搬を記述する方程式である。

この方程式から、非線形分極が角周波数 ω で振動している場合には同じ角周波数の電場の伝搬にその影響が及ぶことが分かる。すなわち、もともとその周波数の電磁波が媒質中になかったときは、非線形分極によりその周波数の電磁波が発生し、もともとその周波数の電磁波が媒質中に存在していた場合は、その電磁波は非線形分極により変調を受けることとなる。いま簡単のために \mathbf{E} 、 \mathbf{P}^{NL} をスカラー量 E 、 P^{NL} で表し、

$$P^{NL}(z, t) = \frac{1}{2} p^{NL}(z) \exp[i(k_p z - \omega t)] + \text{c.c.} \quad (6.40)$$

$$E(z, t) = \frac{1}{2} A(z) \exp[i(k_r z - \omega t)] + \text{c.c.} \quad (6.41)$$

のようにおく。ここで、 $p^{NL}(z)$ 、 $A(z)$ は z に対してゆっくり変化する非線形分極及び電場の振幅である。すると、式 (6.39) は

$$\begin{aligned} \left[\frac{d^2 A(z)}{dz^2} + 2ik_r \frac{dA(z)}{dz} - k_r^2 A(z) \right] \exp[i(k_r z - \omega t)] \\ = -\epsilon \mu_0 \omega^2 A(z) \exp[i(k_r z - \omega t)] - \mu_0 \omega^2 p^{NL}(z) \exp[i(k_p z - \omega t)] \end{aligned} \quad (6.42)$$

となる。 $p^{NL} = 0$ のときに

$$E(z, t) = A(0) \exp[i(k_r z - \omega t)] \quad (6.43)$$

となるためには、

$$k_r^2 = \epsilon \mu_0 \omega^2 \quad (6.44)$$

でなければならない。(これは、式 (4.44) と同じものである。) また z に対する電場振幅の変化があまり大きくないとして、

$$\left| \frac{d^2 A(z)}{dz^2} \right| \ll \left| k_r \frac{dA(z)}{dz} \right| \quad (6.45)$$

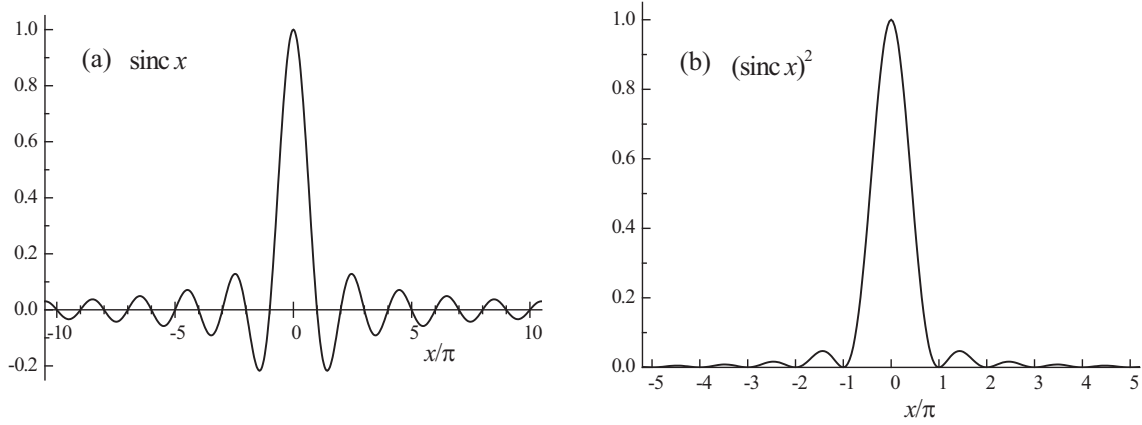


図 6.1: sinc 関数のグラフ

とする。これを緩包絡波近似 (slowly-varying envelope approximation) という。それらを用いると, 結果として式 (6.42) は

$$\frac{dA(z)}{dz} = \frac{i\mu_0\omega^2}{2k_r} p^{\text{NL}}(z) \exp(i\Delta k z) \quad (6.46)$$

となる。ここで

$$\Delta k \equiv k_p - k_r \quad (6.47)$$

である。

いま, 非線形光学媒質の中で非線形分極 P^{NL} によって, 電場 $E(z)$ が新たに生じる場合について考える。さしあたり, 非線形分極 P^{NL} が外部から入射する強い光によって生じていて z によらないとしよう。すなわち,

$$p^{\text{NL}}(z) \equiv p^{\text{NL}} = \text{const.} \quad (6.48)$$

とする。非線形光学媒質は $z = 0$ から $z = L$ の間にだけ存在するとすると, $z = 0$ においては電場はまだ生じていないので $A(0) = 0$ である。これらの条件のもとで式 (6.46) を積分すると, $z = L$ における電場の複素振幅が

$$\begin{aligned} A(L) &= \frac{i\mu_0\omega^2 p^{\text{NL}}}{2k_r} \frac{\sin(\Delta k L/2)}{\Delta k/2} e^{i\Delta k L/2} \\ &= \frac{i\mu_0\omega^2 p^{\text{NL}} L}{2k_r} \text{sinc}(\Delta k L/2) e^{i\Delta k L/2} \end{aligned} \quad (6.49)$$

のように求まる。ここで sinc は,

$$\text{sinc } x \equiv \frac{\sin x}{x} \quad (6.50)$$

で定義される関数で, 図 6.1 に示すように, $x = 0$ のとき最大値 $\text{sinc } x = 1$ をとり, π 程度の幅を持つ。

電場振幅 $|A(L)|$ は $\Delta k = 0$ のときに最大になり, およそ $|\Delta k| < 2\pi/L$ において大きな値をとる。特に $\Delta k = 0$ であれば, $|A(L)|$ は L に比例して増加する。それに対して Δk が有限の場合, L が小さいときには増加するが, やがて減少に転じ $L = 2\pi/\Delta k$ で 0 になる。したがって, 非線形光学媒質の長さに比例して電場振幅が大きくなるようにするためには, $\Delta k = 0$ すなわち

$$k_p = k_r \quad (6.51)$$

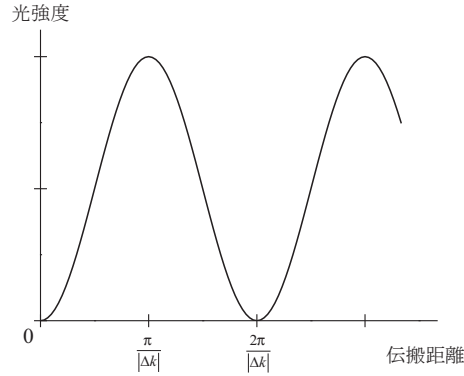


図 6.2: 非線形過程により発生する光の強度の伝搬距離依存性

であることが必要である。これは、非線形分極の波数とそれによって発生する電場の波数とが一致するという条件である。これを位相整合条件 (phase matching condition) という。

それに対し、 Δk がゼロでないときは、光強度は伝搬距離に対して、図 6.2 のように周期 $2\pi/|\Delta k|$ で振動し、 $\pi/|\Delta k|$ で最大値を取る。ここから、長さ $\pi/|\Delta k|$ 程度までは非線形分極の位相が、発生する非線形電場の位相と合っているという意味で、

$$l_c \equiv \pi/|\Delta k| \quad (6.52)$$

をコヒーレンス長 (coherence length) という。非線形光学媒質を有効に用いて強い光を発生させるためには、媒質の厚みが l_c 以下であることが必要である。

なお、上では、非線形分極が伝搬距離によらないと仮定したが、非線形光学過程が効率よく起こり、入射光のエネルギーのうちの無視できない割合が、新たに生成された光に移行する場合は、この仮定は成り立たなくなる。したがって、位相整合条件が完全に満足されていても、発生する光の強度が無限に増加しつづけることはない。

6.4 2 次の非線形光学効果

6.4.1 2 次の非線形光学過程

具体的な非線形分極として、2 次の非線形光学効果について調べよう。2 次の非線形光学効果は反転対称性のない媒質でのみ起こる効果であり、第 2 高調波発生などのために広く用いられている。実用的には、非線形光学媒質として各種の強誘電性の結晶を用いることが多い。

いま、角周波数 ω_1 と ω_2 の成分を持つ光が非線形媒質に入射したとすると、非線形分極は ω_1 と ω_2 との和や差の角周波数を持ついくつかの周波数成分からなる。それらから、図 6.3 に示すように、それぞれと同じ角周波数を持つ電場が発生する。角周波数 $\omega_1 + \omega_2$ の電磁波が発生する現象を和周波発生 (sum frequency generation)、角周波数 $\omega_1 - \omega_2$ の電磁波が発生する現象を差周波発生 (difference frequency generation) という。特に $\omega_1 = \omega_2 \equiv \omega$ の場合、角周波数 2ω と 0 の電場が発生することになる。これを、それぞれ第 2 高調波発生 (SHG: second-harmonic generation)、光整流 (optical rectification) という。また、差周波発生の際に、入射光のうち角周波数の大きな光から角周波数の小さな光にエネルギーが移動するので、角周波数の小さいほうの光は増幅を受ける。この過程を光パラメトリック増幅 (optical parametric amplification) という。また、1 次の電気光学効果であるポッケルス効果は、和周波発生・差周波発生において一方の入射光の周波数がゼロの場合に相当するので、2 次の非線形光学効果の特殊な場合とみなすことができる。以上をまとめて表 6.1 に示す。

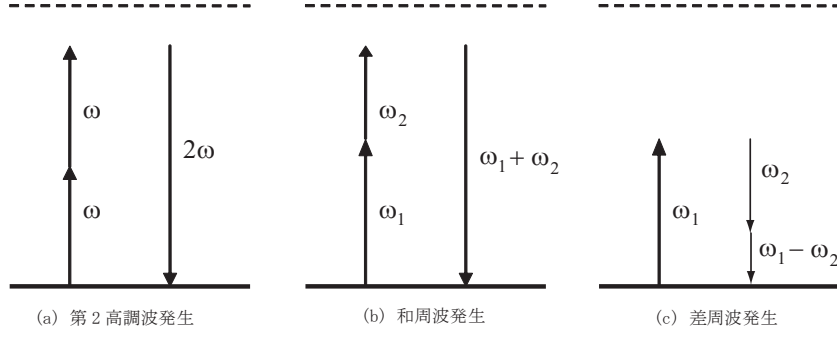


図 6.3: 第 2 高調波発生, 和周波発生, 差周波発生のエネルギー図

表 6.1: 2 次の非線形光学過程の一覧

入力	出力	非線形感受率	非線形光学過程
ω	2ω	$\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$	第 2 高調波発生
ω	0	$\chi^{(2)}(0; \omega, -\omega)$	光整流
ω_1, ω_2	$\omega_1 + \omega_2$	$\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2)$	和周波発生
ω_1, ω_2	$\omega_1 - \omega_2$	$\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2)$	差周波発生, 光パラメトリック増幅
$\omega, 0$	ω	$\chi^{(2)}(\omega; \omega, 0)$	ポッケルス効果

6.4.2 非線形光学係数

いま, 特に第 2 高調波発生を例にとってくわしく調べてみよう。もともと入射する角周波数 ω の電磁波を基本波 (fundamental wave) といい, それに対して非線形光学過程の結果発生した角周波数 2ω の電磁波を第 2 高調波 (second harmonic) という。基本波の電場を

$$E(t) = \frac{1}{2} E^{(\omega)} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.53)$$

とおき, 非線形分極のうちの角周波数 2ω の成分を

$$P^{\text{NL}}(t) = \frac{1}{2} P^{(2\omega)} \exp(-2i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.54)$$

とおくと², 式 (6.11) より,

$$P^{(2\omega)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} [E^{(\omega)}]^2 \quad (6.55)$$

$$= d [E^{(\omega)}]^2 \quad (6.56)$$

が得られる。ここで,

$$d \equiv \frac{\chi^{(2)}}{2} \quad (6.57)$$

は, 非線形光学係数 (nonlinear optical coefficient) と呼ばれ, よく用いられる。³

²電場や分極の振幅 $E^{(\omega)}$, $P^{(2\omega)}$ の定義に, $E(t) = E^{(\omega)} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.}$ などを用いるやり方もあり, この場合, いろいろな量の表式が因子 $2^{(n-1)}$ (n は, 非線形光学過程の次数) だけ異なることになるので, 注意が必要である。

³非線形光学係数 d の定義として $d \equiv \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)}$ が用いられることもある。

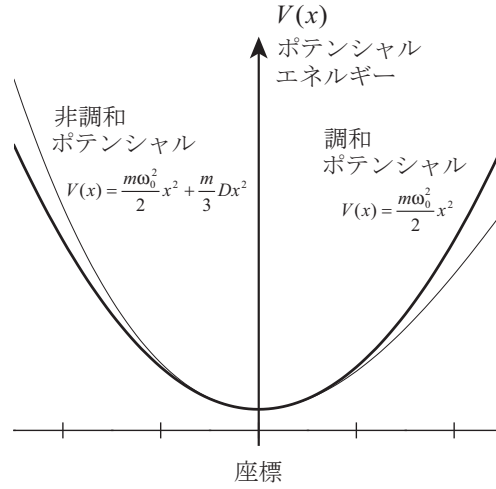


図 6.4: 調和ポテンシャル（太線）と非調和ポテンシャル（細線）

6.4.3 非調和振動子模型

非線形分極の起源について，簡単な模型を用いて考察する。物質系を調和振動子として光との相互作用を考察するローレンツ模型では，物質系の外場に対する応答は線形である。そこで，調和振動子のポテンシャルに非調和性（anharmonicity）を導入することにより，非線形な応答が生じることを見よう。

図 6.4 のように，最低次の非調和性としてポテンシャルに変位の 3 次の項を導入すると，電子の 1 次元のポテンシャルは，

$$V(x) = \frac{m\omega_0^2}{2}x^2 + \frac{m}{3}Dx^3 \quad (6.58)$$

と表せる。ここで D が 3 次の非調和性を表すパラメータである。なお，反転対称性を有する系では，ポテンシャルに奇数次の項は現れないので，この項は，反転対称性のない系にのみ存在する。このとき，電子の運動方程式は，

$$m \left[\frac{d^2x(t)}{dt^2} + \Gamma \frac{dx(t)}{dt} + \omega_0^2 x(t) + Dx(t)^2 \right] = -eE(t) \quad (6.59)$$

となる。

光の電場が小さいときは物質系の応答は線形であると考えると，電子の変位 x を光の電場 E のべきで展開するのがよいアプローチであると判断できる。そのような扱いを一般に摂動法という。そこで， x を

$$x = x^{(1)} + x^{(2)} + \dots \quad (6.60)$$

$$x^{(n)} \propto E^n \quad (6.61)$$

と展開し，式 (6.59) に代入したのち， E の次数ごとに整理する。 E の 1 次の項からは

$$\frac{d^2}{dt^2}x^{(1)}(t) + \Gamma \frac{d}{dt}x^{(1)}(t) + \omega_0^2 x^{(1)}(t) = -\frac{eE(t)}{m} \quad (6.62)$$

が得られるが，これはローレンツ模型の式そのものである。次に， E の 2 次の項から，

$$\frac{d^2}{dt^2}x^{(2)}(t) + \Gamma \frac{d}{dt}x^{(2)}(t) + \omega_0^2 x^{(2)}(t) = -D[x^{(1)}(t)]^2 \quad (6.63)$$

が得られる。

光の電場を

$$E(t) = \frac{1}{2} E_0 \exp(-i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.64)$$

x の 1 次と 2 次の項をそれぞれ

$$x^{(1)}(t) = \frac{1}{2} x_0 \exp(-i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.65)$$

$$x^{(2)}(t) = \frac{1}{2} x_2 \exp(-2i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.66)$$

と置くと、式 (6.62) から

$$x_0 = \frac{-eE_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma)} \quad (6.67)$$

が得られ、これを式 (6.63) に代入して

$$x_2 = \frac{-De^2E_0^2}{2m^2(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma)^2(\omega_0^2 - 4\omega^2 - 2i\omega\Gamma)} \quad (6.68)$$

が得られる。なお、 x の 2 次の項には、ここで考慮した 2ω で振動する成分以外に直流成分も存在するが、ここでは省略する。

分極は、原子密度 N を用いて

$$P(t) = -eNx(t) \quad (6.69)$$

と表すことができるので、2 次の分極は、

$$P^{(2)}(t) = \frac{1}{2} \frac{DNe^3E_0^2}{2m^2(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma)^2(\omega_0^2 - 4\omega^2 - 2i\omega\Gamma)} \exp(-2i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.70)$$

となり、式 (6.56) より、第 2 高調波発生の非線形光学係数が、

$$d = \frac{DNe^3}{2m^2\epsilon_0(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma)^2(\omega_0^2 - 4\omega^2 - 2i\omega\Gamma)} \quad (6.71)$$

のように得られる。

6.4.4 非線形光学係数テンソル

光の電場と非線形分極がベクトルであることを考慮すると、2 次の非線形光学係数や非線形感受率は 3 階のテンソルであり、式 (6.9) や式 (6.56) は、それぞれ

$$P_i^{(2)} = \epsilon_0 \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k \quad (6.72)$$

$$P_i^{(2\omega)} = \epsilon_0 \sum_{j,k} d_{ijk} E_j^{(\omega)} E_k^{(\omega)} \quad (6.73)$$

のように書かれる。ここで i, j, k には x, y, z のどれかが入る。また、 x, y, z の代わりに 1, 2, 3 を用いることもある。媒質の対称性や非線形性の物理的起源などに応じて、各テンソル成分の間には決まった関係が成り立ち、またゼロになる成分がある。

たとえば、第 2 高調波発生を記述する非線形光学係数 d_{ijk} では、添字 j と k の入れ替えに関して不変である。また、関係する光と分極の周波数の存在する領域に媒質の共鳴が存在しない場合は、非線形感受率や非線形光学係数の周波数依存性が無視でき、その結果、添字 i, j, k を自由に入れ替えても値が変わらないという、クラインマンの対称性 (Kleinman's symmetry) が成り立つ。この場合、 d_{ijk} の 27 個の成分のうち独立なものは 10 個だけになる。このようにクラインマンの対称性が成り立つ場合

表 6.2: 2 次非線形結晶の結晶群とゼロでない非線形光学係数のテンソル成分。(表中の \approx は, クラインマンの対称性を仮定した場合に等しくなることを示す。)

非線形光学結晶	結晶群	光学的異方性	ゼロでない成分
GaAs, GaP, ZnTe	$\bar{4}3m$	等方性	$14 = 25 = 36$
KDP	$\bar{4}2m$	一軸性	$14 = 25 \approx 36$
BBO, LiNbO ₃	$3m$	一軸性	$33, 31 = 32 \approx 24 = 15,$ $22 = -12 = -16$
KTP, LBO	$mm2$	二軸性	$31 \approx 15, 32 \approx 24, 33$

表 6.3: 2 次非線形結晶の非線形光学係数の例。CGS 静電単位系 (esu) での値は, m/V 単位の表の値 (表に数値に 10^{-12} を乗じたもの) に $(3/4\pi) \times 10^4$ を乗ずることで得られる。

非線形光学結晶	結晶群	d_{il} (pm/V)
GaAs	$\bar{4}3m$	$d_{14} = 90$
GaP	$\bar{4}3m$	$d_{14} = 100$
ZnTe	$\bar{4}3m$	$d_{14} = 129$
KDP	$\bar{4}2m$	$d_{36} = 0.6$
BBO	$3m$	$d_{22} = 2.3$
LiNbO ₃	$3m$	$d_{33} = 34, d_{31} = 6, d_{22} = 2$
KTP	$mm2$	$d_{33} = 14, d_{31} = 6.5, d_{32} = 5$
LBO	$mm2$	$d_{31} = 1.1, d_{32} = 1.2$

や, 第 2 高調波発生の場合には, 添字 j と k を交換しても d の値が変わらないので, d_{ijk} の代わりに添字の数を減らした表記法 d_{il} を用いることが多い。これを縮約表現 (contracted notation) という。ただし, ここで添字 jk と l とは以下のように対応する。

$$\begin{array}{cccccc}
 jk: & 11 & 22 & 33 & 23, 32 & 31, 13 & 12, 21 \\
 l: & 1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6
 \end{array} \tag{6.74}$$

6.4.5 非線形光学結晶と対称性

2 次の非線形光学効果は, 反転対称性のない媒質においてのみ生じるので, 2 次の非線形光学媒質としては, 多くの場合, 反転対称性のない結晶が用いられる。よく用いられる非線形光学結晶は, KDP (KH_2PO_4 ; potassium dihydrogen phosphate), LBO (LiB_3O_5 ; lithium triborate), BBO ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$; beta-barium borate), KTP (KTiOPO_4 ; potassium titanyl phosphate) LiNbO₃ (ニオブ酸リチウム; lithium niobate), ZnTe, GaP, GaAs などである。

結晶はそれぞれ結晶構造によって決まった対称性を有するので, それによって非線形光学係数テンソルの各成分間に関係が生じ, 独立でゼロでない成分の数は限られる。表 6.2 に, いくつかの結晶における独立でゼロでない成分を示す。

代表的な非線形光学結晶の非線形光学係数 d の測定値の例を表 6.3 に示す。ただし, d の値は, 測定に用いた非線形光学過程の種類や波長に依存するので, 表の値は参考にとどめるべきである。

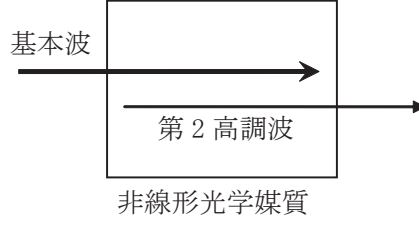


図 6.5: 第 2 高調波発生

入射光の偏光状態が特定の場合で、発生する非線形分極の特定の偏光成分のみを考慮する場合は、それぞれの振幅のみを考えることで、実効的な非線形光学係数 d_{eff} が定義される。これを用いると、

$$P^{(2\omega)} = \epsilon_0 d_{\text{eff}} [E^{(\omega)}]^2 \quad (6.75)$$

のように表すことができる。

6.4.6 第 2 高調波発生の伝搬方程式

非線形光学媒質に基本波が入射したとき、基本波の 2 倍の周波数を持つ非線形分極から、どのようにして第 2 高調波の光が発生するか（図 6.5）、その伝搬の振る舞いを調べよう。

基本波の電場を空間的な依存性を含めて

$$E_1(z, t) = \frac{1}{2} A_1(z) e^{i(k_1 z - \omega t)} + \text{c.c.} \quad (6.76)$$

おくと、非線形分極のうちの角周波数 2ω の成分は

$$P^{\text{NL}}(z, t) = \frac{\epsilon_0 d}{2} [A_1(z)]^2 e^{i(2k_1 z - 2\omega t)} + \text{c.c.} \quad (6.77)$$

となる。この非線形分極によって発生する角周波数 2ω の電場を

$$E_2(z, t) = \frac{1}{2} A_2(z) e^{i(k_2 z - 2\omega t)} + \text{c.c.} \quad (6.78)$$

とおくと、式 (6.46) は

$$\frac{dA_2(z)}{dz} = \frac{i\mu_0(2\omega)^2}{2k_2} \epsilon_0 d [A_1(z)]^2 e^{i\Delta k z} \quad (6.79)$$

となる。ここで

$$\Delta k \equiv 2k_1 - k_2 \quad (6.80)$$

である。

SHG の効率があまり大きくない場合には、 $A_1(z)$ は一定として、さらに $A_2(0) = 0$ とすると、

$$\begin{aligned} A_2(z) &= \frac{2i\mu_0\omega^2}{k_2} \epsilon_0 d [A_1(0)]^2 e^{i\Delta k z/2} \frac{\sin(\Delta k z/2)}{\Delta k/2} \\ &= \frac{2i\mu_0\omega^2}{k_2} \epsilon_0 d [A_1(0)]^2 e^{i\Delta k z/2} z \text{sinc}(\Delta k z/2) \end{aligned} \quad (6.81)$$

が得られる。SHG 光の強度を I_2 とすると、これは基本波の強度 I_1 の 2 乗に比例し、

$$\begin{aligned} I_2 &\propto |A_2(z)|^2 \propto I_1^2 \frac{\sin^2(\Delta k z/2)}{(\Delta k/2)^2} \\ &= I_1^2 z^2 \text{sinc}^2(\Delta k z/2) \end{aligned} \quad (6.82)$$

のように表される。非線形光学媒質を有効に用いて強い SHG 光を発生させるためには、媒質の厚みがコヒーレンス長 $l_c = \pi/|\Delta k|$ 以下であることが必要である。

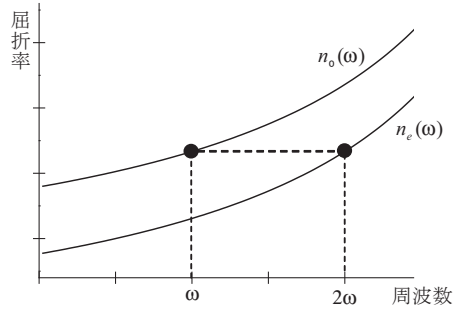


図 6.6: 複屈折性による第 2 高調波発生 の位相整合

6.4.7 位相整合

では, Δk は通常の光学媒質においてどの程度の大きさを持つであろうか。波数 k_1, k_2 は角周波数 $\omega, 2\omega$ における屈折率 $n(\omega), n(2\omega)$ を用いて,

$$k_1 = n(\omega) \cdot \omega / c \quad (6.83)$$

$$k_2 = n(2\omega) \cdot 2\omega / c \quad (6.84)$$

と表されるので,

$$\Delta k = 2k_1 - k_2 = \frac{2\omega}{c} [n(\omega) - n(2\omega)] \quad (6.85)$$

である。一般に, 光学媒質の屈折率は周波数に依存する。特に, SHG に用いられるような透明媒質では, 基本波, 第 2 高調波の周波数領域で正常分散を示し, 媒質の屈折率は周波数が高いほど大きくなる。すなわち,

$$n(2\omega) > n(\omega) \quad (6.86)$$

である。典型的な値として $n(2\omega) - n(\omega) = 0.02$ とし, 基本波の波長を $1 \mu\text{m}$ とすると, $l_c = 12.5 \mu\text{m}$ となるので, 非常に短い距離しか SHG がコヒーレントに足し合わせられないことが分かる。

以下に述べるように複屈折性 (birefringence) を持つ非線形光学媒質を用いることによりこの困難を乗り越え, 位相整合条件

$$n(\omega) = n(2\omega) \quad (6.87)$$

を満足させることができる。この条件が満足されれば, SHG 光強度は非線形光学媒質の厚みの 2 乗に比例していくらか大きくすることができることになる。実際には, 基本波のエネルギーが第 2 高調波に移行することで, 基本波の強度が伝搬距離とともに減ってくるので, SHG 光強度が無限に大きくなることはないが, 基本波のエネルギーに対して数十%の変換効率は比較的容易に達成できる。複屈折性を有する光学媒質は光の進行方向に対して垂直な面内で二つの互いに垂直な軸を持ち, そこを伝搬する電磁波はそれぞれの軸に平行な電場成分がそれぞれ異なった屈折率を感じて伝搬する。すなわち二つの軸を x 軸, y 軸とすると, 電場のそれぞれの軸に平行な成分 E_x, E_y に対して屈折率 n_x, n_y が存在し, それがお互いに異なる。 n_x, n_y はそれぞれ周波数依存性 (分散) を持っているもので, 例えば, いま角周波数 ω から 2ω の範囲で $n_x > n_y$ でありそれぞれが正常分散を持っているとすると, 図 6.6 のようにうまく条件を選ぶことによって $n_x(\omega) = n_y(2\omega)$ とすることができる可能性がある。

いま簡単のために, 複屈折性の媒質として, 一軸性の結晶を考える。一軸性結晶においては, c 軸という結晶に固定した特定の方向の軸が存在する。この軸に対して角度 θ の方向に進行する光を考えると, この光の偏光は, 電場が c 軸に垂直な偏光と, c 軸方向にも電場成分を持つ偏光の, 互いに垂直な二つの偏光成分に分けられる。電場が c 軸に垂直な偏光に対する屈折率は進行方向 θ によらないので,

これを常光線 (ordinary wave) といい、もう一方を異常光線 (extraordinary wave) という。それぞれの屈折率を $n_o(\theta)$, $n_e(\theta)$ とおくと, θ 依存性は

$$n_o(\theta) = n_o \quad (6.88)$$

$$\frac{1}{[n_e(\theta)]^2} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (6.89)$$

のように与えられる。ここに現れる n_o と n_e の大小によって, $n_e > n_o$ の場合を正の複屈折性, $n_e < n_o$ の場合を負の複屈折性という。いま例えば負の複屈折性の場合を考え, それぞれの周波数に対する依存性は正常分散であるとする, ある進行方向 θ_m に対して

$$n_o^\omega(\theta_m) = n_e^{2\omega}(\theta_m) \quad (6.90)$$

とすることができる可能性がある。このとき θ_m は

$$\sin^2 \theta_m = \left[\frac{1}{(n_o^\omega)^2} - \frac{1}{(n_o^{2\omega})^2} \right] \left/ \left[\frac{1}{(n_e^{2\omega})^2} - \frac{1}{(n_o^{2\omega})^2} \right] \right. \quad (6.91)$$

で与えられる。これを満たす θ_m は基本波の角周波数 ω によって変化し, 一般にある特定の周波数範囲でのみ存在する。正の複屈折性の場合, 同様に

$$n_e^\omega(\theta_m) = n_o^{2\omega}(\theta_m) \quad (6.92)$$

を満たす θ_m が存在する可能性がある。このように, 位相整合条件を満たす光の進行角 θ_m を位相整合角 (phase matching angle) という。

以上のように, うまく光の進行方向を調整すると正の複屈折性の場合には異常光線の偏光を持った基本波を入射することによって常光線の第2高調波が, また負の複屈折性の場合には常光線の偏光を持った基本波を入射することによって異常光線の第2高調波が, 発生する。これらをタイプ I (type I) の位相整合と呼ぶ。それに対して, 常光線・異常光線の両方の偏光成分を持った基本波を用いて, 例えば

$$\frac{1}{2} [n_o^\omega(\theta_m) + n_e^\omega(\theta_m)] = n_e^{2\omega}(\theta_m) \quad (6.93)$$

のような位相整合条件を用いて第2高調波を発生させる方法をタイプ II (type II) の位相整合と呼ぶ。また, ここで見てきた方法は光の進行方向 (あるいは光の進行方向に対して非線形光学結晶の角度) を調整することによって位相整合条件を満たす方法であり, 角度位相整合と呼ばれる。それ以外に, 温度による屈折率の変化を利用した温度位相整合なども用いられる。

6.4.8 光子描像

第2高調波発生の位相整合条件

$$2k_1 = k_2 \quad (6.94)$$

は, 第2高調波発生過程を量子力学的に考えて, 角周波数 ω の光子二つが角周波数 2ω の光子一つに変換されたとみなすことによっても理解することができる。このとき, 関係する光子の間でエネルギー保存の関係

$$\hbar\omega + \hbar\omega = \hbar(2\omega) \quad (6.95)$$

が成り立つ。それに対して, 運動量保存の式

$$\hbar k_1 + \hbar k_1 = \hbar k_2 \quad (6.96)$$

が, 位相整合条件と等しい。

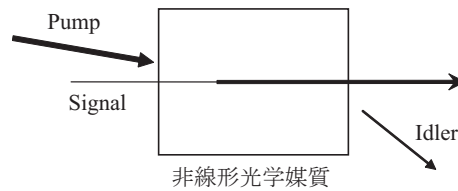


図 6.7: 光パラメトリック増幅

6.4.9 光パラメトリック過程

和周波発生の逆に，入射した光子のエネルギーが二つの光子に分かれる過程がある。これを，光パラメトリック過程（optical parametric process）という。以下に述べるいずれの過程も，その現象が効率よく起こるためには，和周波発生などと同様な位相整合条件を満たす必要がある。

角周波数 ω_{pump} と ω_{signal} の光から $\omega_{\text{idler}} = \omega_{\text{pump}} - \omega_{\text{signal}}$ の差周波光が発生するとき，エネルギーの流れを考えると，高周波数側の入射光の光子エネルギー $\hbar\omega_{\text{pump}}$ が低周波数側の入射光と差周波光の周波数にそれぞれ， $\hbar\omega_{\text{signal}}$ と $\hbar\omega_{\text{idler}}$ の割合で移ることになる。そこで，差周波発生にともなって，低周波数側の入射光の増幅が同時に起きている。この増幅作用に注目したとき，これを光パラメトリック増幅（OPA：optical parametric amplification）といい，関与している 3 つの光を，それぞれ，ポンプ光，シグナル光，アイドラー光という。また，この方法で光を増幅する装置を光パラメトリック増幅器（OPA：optical parametric amplifier）という。

単一の角周波数 ω を持つ入射ビームから，非線形光学媒質内で $\omega = \omega_1 + \omega_2$ を満たす角周波数 ω_1 と ω_2 の光に分かれる現象を自発的パラメトリック下方変換（spontaneous parametric down conversion）という。この過程は電磁場の零点ゆらぎに対する光パラメトリック増幅とみなすこともでき，いわゆる非古典的な光（nonclassical light）を発生できる。

光パラメトリック増幅媒質により増幅された光が，また元の増幅媒質に戻るよう鏡などを配置することによって，共振器を構成することができる。このような共振器では，通常のレーザーと同様に，利得が損失を上回れば発振が起きる。これを光パラメトリック発振（OPO：optical parametric oscillation）といい，その発振器を光パラメトリック発振器（OPO：optical parametric oscillator）という。光パラメトリック発振器では，自発的パラメトリック下方変換により発生した光や，熱放射などが種となり，増幅が開始する。光パラメトリック発振器では，多くの場合，非線形光学結晶の角度を調整することにより，位相整合条件を変化させ，発振波長を変えることができる。

6.5 3 次の高線形光学効果

6.5.1 3 次の高線形光学現象

3 次の高線形光学効果は，反転対称性のある媒質においても存在する。したがって 3 次の高線形光学効果は，どのような媒質においても起こりうる最低次の高線形光学効果である。3 次の高線形分極は入射光電場の 3 次比例するので，入射光に含まれる 3 つの周波数の間の和や差の周波数を持つ新たな光が発生することになる。その中のいくつかの特別なケースについて以下に述べる。

まず，入射光の角周波数 ω に対して $3\omega = \omega + \omega + \omega$ の光が発生する現象は，第 3 高調波発生（THG；third-harmonic generation）である。また， $\omega = \omega + \omega - \omega$ の非線形分極によって生じる現象を総称して縮退四光波混合（degenerate four-wave mixing）と呼んでいる。このとき，入射光の波数ベクトルが k_1, k_2, k_3 とそれぞれ異なれば，出力光の波数ベクトルは $k_1 + k_2 - k_3$ のようになり，新たな方向に入射光と同じ周波数の光が発生する。また，屈折率が光強度によって変化する光カー効果（optical Kerr

表 6.4: 3 次の非線形光学過程の一覧

入力	出力	非線形感受率	非線形光学過程
ω	3ω	$\chi^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega)$	第 3 高調波発生
ω	ω	$\text{Re}\{\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)\}$	光カー効果
ω	ω	$\text{Im}\{\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)\}$	吸収飽和, 2 光子吸収
ω	ω	$\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$	フォトンエコー, 過渡的回折格子, 位相共役波発生, 縮退 4 光波混合
ω_1, ω_2	ω_1	$\text{Re}\{\chi^{(3)}(\omega_1; \omega_1, -\omega_2, \omega_2)\}$	光カー効果
ω_1, ω_2	ω_1	$\text{Im}\{\chi^{(3)}(\omega_1; \omega_1, -\omega_2, \omega_2)\}$	誘導吸収, 2 光子吸収, 誘導ラマン利得 逆ラマン効果
ω_1, ω_2	ω_1	$\chi^{(3)}(\omega_1; \omega_1, -\omega_2, \omega_2)$	過渡的回折格子
ω_1, ω_2	$2\omega_1 - \omega_2$	$\chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2, \omega_1)$	コヒーレント・ラマン散乱, 4 光波混合
$\omega_1, \omega_2, \omega_3$	$\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$	$\chi^{(3)}(\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3; \omega_1, \pm\omega_2, \pm\omega_3)$	非縮退 4 光波混合
$\omega, 0$	2ω	$\chi^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0)$	電場誘起第 2 高調波発生

effect) や吸収係数が光強度によって変化する吸収飽和や 2 光子吸収は, この過程の特殊な場合に当たる。また, 二つの異なる角周波数 ω_1, ω_2 を持つ入射光から $\omega_2 = \omega_1 - \omega_1 + \omega_2$ の非線形分極を発生する場合も同様である。三つの異なる角周波数 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ から角周波数 $\omega_1 - \omega_2 + \omega_3$ の非線形分極を生じる場合が一般的な非縮退四光波混合であり, $\omega_1 - \omega_2$ が物質内の振動モードや音響モードに共鳴しているときは, それぞれコヒーレント・ラマン散乱 (coherent Raman scattering), コヒーレント・ブリュアン散乱 (coherent Brillouin scattering) と呼ばれる。それらを表 6.4 にまとめた。

6.5.2 光強度に依存する光学定数

媒質の屈折率や吸収係数といった光学定数が, 光の強度に比例して変化する現象は, 3 次の非線形光学現象として理解することができる。3 次の非線形分極のうちの入射電場と同じ周波数を持つ成分は, 実効的な感受率が光強度に比例して変化するを示している。いま, 入射電場 E の角周波数を ω とすると,

$$E(t) = \frac{1}{2} E^{(\omega)} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.97)$$

のように表される。このとき角周波数が ω の分極を,

$$P^{(\omega)}(t) = \frac{1}{2} P^{(\omega)} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.} \quad (6.98)$$

と書くと, これは線形分極と 3 次の非線形分極の和として,

$$P^{(\omega)} = P_L^{(\omega)} + P_{NL}^{(\omega)} \quad (6.99)$$

$$P_L^{(\omega)} = \epsilon_0 \chi E^{(\omega)} \quad (6.100)$$

$$\begin{aligned}
 P_{\text{NL}}^{(\omega)} &= \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} [E^{(\omega)}]^2 [E^{(\omega)}]^* \\
 &= \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} |E^{(\omega)}|^2 E^{(\omega)}
 \end{aligned} \tag{6.101}$$

のように表わされるので、これらを合わせて、

$$P^{(\omega)} = \epsilon_0 \left\{ \chi + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E^{(\omega)}|^2 \right\} E^{(\omega)} \tag{6.102}$$

となる。あるいは、角周波数 ω の光の強度が

$$I^{(\omega)} = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n |E^{(\omega)}|^2 \tag{6.103}$$

(ここで、 n は、角周波数 ω における媒質の屈折率。) と書けることを用いると、

$$P^{(\omega)} = \epsilon_0 \left\{ \chi + \frac{3\chi^{(3)}}{2\epsilon_0 c n} I^{(\omega)} \right\} E^{(\omega)} \tag{6.104}$$

となる。これは、この媒質の感受率が χ から、実効的な感受率

$$\chi_{\text{eff}} = \chi + \frac{3\chi^{(3)}}{2\epsilon_0 c n} I^{(\omega)} \tag{6.105}$$

に変化したのと同じことである。すなわち、入射光の強度に比例して媒質の光学定数が変化する現象は、3 次の非線形分極を用いて記述することができる。

入射光の強度に比例して媒質の光学定数が変化する現象のうち、屈折率が変化する現象は光カー効果 (optical Kerr effect) と呼ばれ、その効果は、 $\chi^{(3)}$ の実部によって表わされる。また、吸収係数が変化する現象は、 $\chi^{(3)}$ の虚部で表わされるが、その変化の物理的起源に応じて、2 光子吸収 (two-photon absorption)、誘導吸収 (induced absorption)、吸収飽和 (absorption saturation)、誘導ラマン利得 (stimulated Raman gain)、逆ラマン効果 (inverse Raman effect) などと呼ばれる。

これらの現象は、光によって物質の性質を制御できることを示しており、光スイッチや光メモリーへの応用につながる。

6.5.3 光カー効果

媒質の屈折率が光強度に比例して変化する現象を光カー効果という。光強度を I 、媒質の光強度に依存する屈折率を n とすると、

$$n = n_0 + n_2 I \tag{6.106}$$

と表わせるが、ここで n_0 は線形な屈折率であり、 n_2 を非線形屈折率 (nonlinear refractive index) という。⁴ ここで定義された n_2 と 3 次の非線形感受率の実部 $\chi^{(3)}$ とは、以下のように関係付けられる。

いま、媒質の消費係数 κ は、1 より十分小さい ($\kappa \ll 1$) とする。このとき、屈折率 n と感受率の実部 χ' のあいだに

$$n = \sqrt{1 + \chi'} \tag{6.107}$$

が成り立つ。式 (6.105) において、光強度による χ の変化分を $\Delta\chi$ とし、それによる屈折率の変化分を Δn とすると、

$$n + \Delta n = \sqrt{1 + \text{Re}\{\chi + \Delta\chi\}} \tag{6.108}$$

$$\cong \sqrt{1 + \chi'} \left[1 + \frac{\text{Re}\{\Delta\chi\}}{2(1 + \chi')} \right] = n_0 + \frac{\text{Re}\{\Delta\chi\}}{2n_0} \tag{6.109}$$

⁴ 電場振幅 E を用いた式 $n = n_0 + n_2 |E|^2$ によって n_2 を定義するやり方もある。この場合、 E の定義が一意的でないことにも注意が必要である。

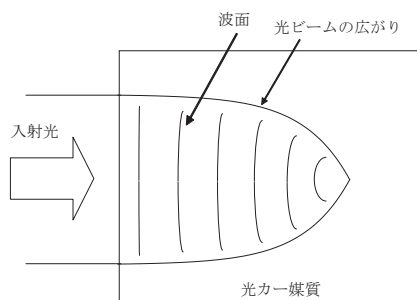


図 6.8: 光ビームの自己集束

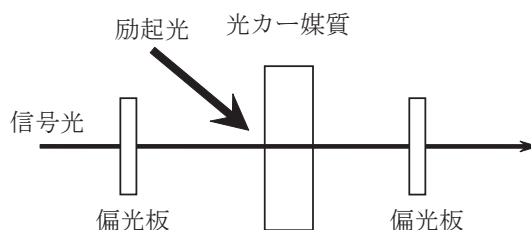


図 6.9: 光カーシャッター

となるので、式 (6.105)、式 (6.106) と比べることで、

$$n_2 = \frac{3\text{Re}\{\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)\}}{4\epsilon_0 c n^2} \quad (6.110)$$

のように、 n_2 と $\text{Re}\{\chi^{(3)}\}$ とが関係付けられる。

ほとんどの透明媒質は、正の n_2 を持つ。光カー効果の物理的な起源としては、電子分極の非線形性や、液体などにおける分子の配向、ラマン効果などがある。

通常の光ビームは、ビームの中心付近の強度が高く、周辺に行くにしたがって強度が下がるような強度分布を持っているので、高強度のレーザー光ビームが媒質を通過すると、光カー効果のため、ビームの中心付近の屈折率が高くなり、媒質は凸レンズの働きをすることになる。これをカー・レンズ効果 (Kerr lens effect) という。この効果のため、高強度の光ビームが図 6.8 のように媒質中で集束されてしまうことがある。これを自己集束 (self-focusing) という。自己集束が起きると、さらに多光子吸収などの非線形光学効果により、媒質が光学損傷 (optical damage) を受けたり、光学損傷には至らなくても、光ビームの伝搬が不安定になったりすることがある。また、レーザー共振器の中でカー・レンズ効果を生じるようにして、光強度が強くてカー・レンズ効果が十分に起きるときだけ帰還がうまく働くように共振器の光学系を組むと、これは超高速な過飽和吸収体として機能するので、これを用いて受動モード同期を起こすことができる。これをカー・レンズ・モード同期 (Kerr lens mode locking) という。チタンサファイアレーザーなどによる数十フェムト秒以下の超短光パルス発生には、おもにカー・レンズ・モード同期が用いられている。

光ファイバー (optical fiber) の中では、光が狭い領域に閉じ込められていることと、伝搬距離が長いことにより、高強度の光パルスに対して顕著な光カー効果が生じる。それにより、光パルスが形を変えずに長距離を伝搬する光ソリトン (optical soliton) 現象や、光のスペクトルが極端に広がる超広帯域光発生 (supercontinuum generation) などが生じる。

光カー効果が起きているときには、媒質の屈折率には異方性が生じる。すなわち媒質には複屈折性が生じる。そこで、図 6.9 のように光カー媒質を偏光板 (polarizer) などと組み合わせることで、光

(励起光)が入射したときにだけ光(信号光)が通過できる装置を作ることができる。これを光カー・シャッター(optical Kerr shutter)という。励起光として超短光パルスを用いることで、1 ピコ秒以下の時間だけ開くシャッターを作ることができ、超高速現象(ultrafast phenomena)の観測などに用いられる。

6.5.4 吸収飽和

いま準位 1 (下準位), 準位 2 (上準位) からなる 2 準位系の物質を考え, 各準位にある系の数を N_1 , N_2 とし, 系の総数を $N = N_1 + N_2$ とする。準位 2 からは, 自然放出などによって時定数 T_1 で準位 1 へと緩和が起きているとする。すなわち, 光などとの相互作用を考慮しない場合に,

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = -\frac{N_2}{T_1} \quad (6.111)$$

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = \frac{N_2}{T_1} \quad (6.112)$$

が成り立つとする。そこにこの系と共鳴する光が入射するものとし, その強度を I とする。この光による吸収及び誘導放出の遷移速度が光の強度に比例するとすると, 各準位の占有数の時間変化は

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = -\frac{N_2(t)}{T_1} + aI[N_1(t) - N_2(t)] \quad (6.113)$$

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = \frac{N_2(t)}{T_1} - aI[N_1(t) - N_2(t)] \quad (6.114)$$

のように表せる。光強度 I が時間的に一定だとしてこれを解くと, 定常状態の解として

$$N_1 - N_2 = \frac{1}{1 + 2aT_1I}N \quad (6.115)$$

が得られる。この系による光の吸収の強さは $N_1 - N_2$ に比例するので, 吸収は光強度が増加するにしたがって減少することになる。その原因は, 強い光によって上準位に多くの系が移り, また下準位の系が減少したことにある。このような現象を吸収飽和(absorption saturation)という。系の吸収係数を光強度の関数として

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_S} \quad (6.116)$$

の形に表したとき, I_S を飽和強度(saturation intensity)という。この式を光強度で展開して最低次まで取れば,

$$\alpha(I) = \alpha_0 \left(1 - \frac{I}{I_S}\right) \quad (6.117)$$

となるので, 吸収飽和は(最低次で)3 次の非線形光学効果の一例であることが分かる。

6.5.5 2 光子吸収

物質に角周波数 ω の光が入射したとき, 図 6.10 のように光子 2 つ分のエネルギー $2\hbar\omega$ を一度に物質が得て, 高いエネルギー準位に遷移するとき, この過程を 2 光子吸収(two-photon absorption)という。それに対して, $\hbar\omega$ だけのエネルギーを得る過程は, 1 光子吸収(one-photon absorption)と呼ばれる。2 光子吸収過程の遷移レートは, 光強度の 2 乗に比例するので, 光の強度が高い場合にのみ顕著に生じる。入射光の光子エネルギーが, 固体のバンドギャップより低い場合や, 分子の HOMO-LUMO (最高占有分子軌道; highest occupied molecular orbital - 最低非占有分子軌道; lowest unoccupied molecular orbital) 遷移エネルギーより低い場合, 1 光子では遷移できないので, これらの物質はほぼ透明である

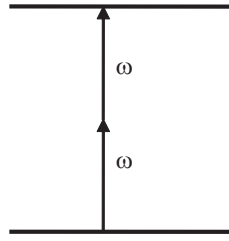


図 6.10: 2 光子吸収

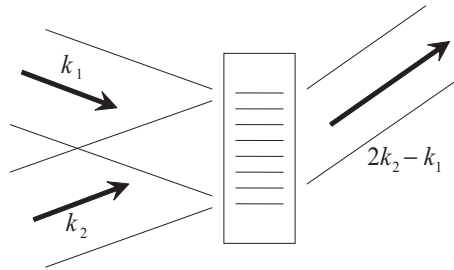


図 6.11: 過渡的回折格子による入射光の回折

が、2 光子遷移が可能であれば、入射光の強度を高くすると吸収が生じ、その吸収係数 α は光強度 I に比例する。すなわち、

$$\alpha = \beta I \quad (6.118)$$

のようになる。ここで β は 2 光子吸収係数と呼ばれる。2 光子吸収係数は、3 次の非線形感受率の虚部 $\text{Im}\{\chi^{(3)}\}$ に比例する。

2 光子吸収は、瞬間的な光強度の高い超短光パルスにおいて特に顕著であるので、フェムト秒レーザー光を用いた 2 光子励起顕微鏡 (two-photon excitation microscope) に用いられる。2 光子励起顕微鏡では、2 光子吸収により生じる発光を検出する。

一般に光子 2 つ以上を同時に用いてはじめて物質を励起できる場合、その過程を多光子吸収 (multiphoton absorption)、多光子励起 (multiphoton excitation) という。また、多光子励起により物質にエネルギーが与えられた結果、蛍光、イオン化、光電子放出、光電流、異性化などが起きることがあり、それぞれ、多光子蛍光 (multiphoton fluorescence)、多光子イオン化 (multiphoton ionization) などと呼ばれる。多光子吸収は、透明物質の光損傷 (optical damage) の初期過程として重要である。

6.5.6 過渡的回折格子

入射方向の異なる 2 本の光ビームが媒質に入射すると、媒質中で生じた干渉縞により、光強度が空間的に周期的に変調される。その媒質が 3 次の非線形光学効果を有すると、光強度に応じて媒質の感受率が変化するので、媒質の感受率が空間的に周期的な変調を受ける。これが一種の回折格子として作用し、図 6.11 のように入射光が回折される現象が起きる。たとえば、波数ベクトル k_1 と k_2 の 2 本の光ビームが入射したとき、媒質内に $k_1 - k_2$ の波数ベクトルを持つ回折格子が生成され、それにより

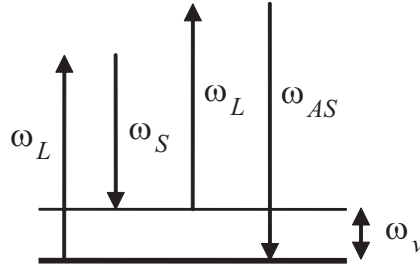


図 6.12: コヒーレント反ストークス・ラマン散乱のエネルギー準位図

入射光 k_1 が $2k_1 - k_2$ の方向に，入射光 k_2 が $2k_2 - k_1$ の方向に，それぞれ回折される。このような現象を，過渡的回折格子（transient grating）という。

6.5.7 コヒーレント・ラマン散乱

エネルギー $\hbar\omega_v$ を持つ振動などの準位を有する媒質に，その差周波が ω_v に等しい二つの周波数成分 ω_L, ω_S ($\omega_L - \omega_S = \omega_v$) を持つ光が入射すると， ω_v の振動準位がコヒーレントに励起される。それが入射光の一方の周波数成分を変調することにより，新たに $\omega_L + \omega_v$ や， $\omega_S - \omega_v$ の光が発生する。このような現象を，コヒーレント・ラマン散乱という。図 6.12 のように， $\omega_L + \omega_v = 2\omega_L - \omega_S$ の光が発生する過程を，コヒーレント・反ストークス・ラマン散乱（CARS; coherent anti-Stokes Raman scattering）という。

6.6 n 次の非線形光学現象

一般に n 次の非線形光学過程においては， n 次の非線形感受率の存在により，角周波数 ω_i ($i = 1, \dots, n$) の成分を持つ入射電場により角周波数 $\omega_p = \sum_{i=1}^n \pm \omega_i$ を持つ非線形分極が発生する。（ここで， \pm はそれぞれの i について $+$ と $-$ のどちらをとってもよいこととする。）その結果，それらの入射電場と ω_p の電場との間で混合が起きるので，この過程を一般に $(n+1)$ 光波混合（ $(n+1)$ -wave mixing）と呼ぶことがある。このとき入射電場の波数ベクトルを k_i ($i = 1, \dots, n$) とすると，非線形分極は波数ベクトル $k_p = \sum_{i=1}^n \pm k_i$ を持つ。したがって，この $(n+1)$ 光波混合過程によって新たに発生する電場は角周波数 $\omega_r = \omega_p$ を持ち，またその波数ベクトル k_r が $k_r = k_p$ を満たすときに，電場が伝搬距離に比例して大きくなる。すなわち，この場合の位相整合条件は

$$k_r = \sum_{i=1}^n \pm k_i \quad (6.119)$$

であり，このとき角周波数に関しては，

$$\omega_r = \sum_{i=1}^n \pm \omega_i \quad (6.120)$$

が成り立つ。ここで，上の二つの等式の総和における符号は， \pm のどちらをとってもよいが， k_r の式と ω_r の式とで同じ i に対しては共通にする必要がある。

$(n+1)$ 光波混合過程を光子描像で考えると，角周波数 ω_i ($i = 1, \dots, n$) を持つ光子がそれぞれ消滅したり生成したりした結果，角周波数 ω_p の光子が一つ生成されたとみなすことができる。そのように考えると，式 (6.120) は光子の間のエネルギー保存則を，また式 (6.119) は運動量保存則を表している。

章末問題

1. $1\ \mu\text{m}$ と $1.2\ \mu\text{m}$ の波長の光を用いた非線形光学効果による波長変換について、以下の問いに答えよ。
 - (a) $1\ \mu\text{m}$ の光の第 2 高調波，第 3 高調波，第 4 高調波の波長は，それぞれいくらか。また，それらのうち可視光はどれか。
 - (b) $1.2\ \mu\text{m}$ の光の第 2 高調波，第 3 高調波，第 4 高調波の波長は，それぞれいくらか。また，それらのうち可視光はどれか。
 - (c) 2 次の非線形光学過程のみを用いて第 3 高調波，第 4 高調波を発生させるにはどうすればよいか。
 - (d) $1\ \mu\text{m}$ と $1.2\ \mu\text{m}$ の光の和周波の光の波長はいくらか。また，この和周波発生過程に対する位相整合条件を，それぞれの波長（ $1\ \mu\text{m}$ ， $1.2\ \mu\text{m}$ ，和周波）における媒質の屈折率を用いて表せ。ただし，入射光の進行方向は同じとする。
 - (e) $1\ \mu\text{m}$ と $1.2\ \mu\text{m}$ の光の差周波の光の波長はいくらか。また，この差周波発生過程に対する位相整合条件を，それぞれの波長における媒質の屈折率を用いて表せ。ただし，入射光の進行方向は同じとする。

索引

- アーク・ランプ, 29
アイドラ光, 73
アインシュタインの A 係数, B 係数, 12, 57
アルゴンイオンレーザー, 32
- 異常光線, 72
異常分散, 47
位相緩和, 55
位相整合, 65, 71
位相速度, 38
1 光子吸収, 77
一軸性結晶, 71
1 重項, 34
因果律, 42
- 運動量保存, 72
- エキシマー, 33
エキシマーレーザー, 32, 33
エタロン, 27
エックス線レーザー, 35
エネルギー保存, 72
エネルギー密度, 44
LBO, 69
エルビウム添加ファイバー増幅器, 31
遠赤外レーザー, 34
- オームの法則, 38
オプトエレクトロニクス, 1
音響光学効果, 25, 28
音響光学変調素子, 28
- カー効果, 28
CARS, 79
カー・レンズ効果, 76
カー・レンズ・モード同期, 26, 76
カイザー, 2
回折格子, 27
回転波近似, 53, 56
ガウス関数, 49
- 化学レーザー, 35
鏡, 27
可干渉性, 4
可視光, 1
過渡的回折格子, 78, 79
過飽和吸収体, 26, 76
GaAs, 69
GaP, 69
緩包絡波近似, 64
緩和, 55
- 幾何光学, 1
希ガスイオンレーザー, 32
気体レーザー, 32
基本波, 66
逆ラマン効果, 75
キャビティ・ダンパー, 28
吸光度, 46
吸収係数, 41
吸収断面積, 45
吸収飽和, 74, 75, 77
Q スイッチ, 23, 28
Q 値, 22
共振器, 16
共振器モード, 17
許容遷移, 53
均一広がり, 49
禁制遷移, 53
金属蒸気レーザー, 34
- 空間的コヒーレンス, 4
屈折率, 40
クラインマンの対称性, 68
クラマース・クローニッヒの関係式, 42
クリプトンイオンレーザー, 32
群屈折率, 40
群速度, 40
- KDP, 69

KTP, 69

光学, 1

光学損傷, 27, 76

光学密度, 46

項間交差, 34

光子, 1, 8

光子描像, 72

光線光学, 1

光速, 1

黒体, 7

黒体放射, 7

固体レーザー, 29

コヒーレンス, 4, 55

コヒーレンス長, 65, 70

コヒーレント, 4

コヒーレント光学過程, 55

コヒーレント・反ストークス・ラマン散乱, 79

コヒーレント・ブリュアン散乱, 74

コヒーレント・ラマン散乱, 74, 79

最高占有分子軌道, 77

最低非占有分子軌道, 77

差周波発生, 65

3重項, 34

3準位レーザー, 13, 16

時間的コヒーレンス, 4

色素レーザー, 34

シグナル光, 73

自己集束, 76

自然放出, 10, 12

実効的感受率, 75

実効的非線形光学係数, 70

自発的パラメトリック下方変換, 73

ジャイアントパルス, 23

自由電子レーザー, 35

縮退因子, 62

縮退四光波混合, 73

縮約表現, 69

シュテファン・ボルツマンの放射法則, 9

受動モード同期, 25, 76

シュレーディンガー方程式, 51

常光線, 72

消衰係数, 40

真空のインピーダンス, 43

真空の誘電率, 36

sinc 関数, 64

ZnTe, 69

振動子強度, 48, 57

振動磁場, 43

振動分極, 55

スペクトル広がり, 48

正常分散, 47, 71

石英, 28

摂動, 67

遷移確率, 55

遷移双極子モーメント, 52

線形光学, 59

選択則, 53

双極子近似, 52

双極子モーメント, 36, 47, 52, 55

相互作用ハミルトニアン, 51, 52

損失変調, 25

ダイクロイックミラー, 27

第3高調波発生, 73

第2高調波, 30

第2高調波発生, 65

タイプII位相整合, 72

タイプI位相整合, 72

太陽光スペクトル, 10

多光子イオン化, 78

多光子吸収, 76, 78

多光子蛍光, 78

多光子励起, 78

縦モード, 17

炭酸ガスレーザー, 33

チタンサファイアレーザー, 31, 76

窒素レーザー, 32, 34

チャープミラー, 27

超音波, 28

超高速現象, 77

超広帯域光発生, 76

超短光パルス, 4, 31

定常状態, 51

テラヘルツ波, 1

テラヘルツレーザー, 34

- ZnTe, 69
電気感受率, 36
電気光学効果, 23, 28
電気光学変調素子, 28
電気伝導度, 38
電磁波, 1, 36
電束密度, 36

同期励起, 25
銅蒸気レーザー, 32, 34
透磁率, 36
等分配則, 7
ドップラー広がり, 49

ニオブ酸リチウム, 69
2 光子吸収, 74, 75, 77
2 光子吸収係数, 78
2 光子励起顕微鏡, 78
二重性, 1

Nd:YAG レーザー, 30

能動モード同期, 25

波数, 2
波束, 40
発振線幅, 32
発振のしきい値, 19, 20
波動光学, 1
波動方程式, 38, 39
パリティ, 53
半古典論, 51
半値全幅, 49
反転対称性, 53, 60
反転分布, 12, 13
半透鏡, 27
半導体リソグラフィー, 33
半導体レーザー, 35
バンドパスフィルター, 27

BBO, 69
ビームスプリッター, 27
GaAs, 69
光カー効果, 73, 75
光カー・シャッター, 77
光記録, 4
光計測, 4

光整流, 65
光ソリトン, 76
光損傷, 78
光通信, 1, 4
光の吸収, 10
光の強度, 41, 43
光の増幅, 13, 19
光の放出, 11
光パラメトリック過程, 73
光パラメトリック増幅, 65, 73
光パラメトリック増幅器, 73
光パラメトリック発振, 73
光パラメトリック発振器, 73
光ファイバー, 76
光物性, 1
非古典光, 73
非線形感受率, 59
非線形屈折率, 75
非線形光学, 59
非線形光学係数, 66
非線形分極, 59
非調和振動子, 67
非調和性, 67

ファブリー・ペロー共振器, 16, 19, 24
フィルター, 27
フェムト, 25
フェムト秒, 25
フォクト関数, 50
負温度状態, 13
不確定性関係, 49
不均一広がり, 49
複屈折, 71
複屈折フィルター, 28
複素感受率, 5, 39
複素屈折率, 39
複素表現, 5
複素誘電率, 39
物理光学, 1
フラッシュ・ランプ, 29
プランクの熱放射式, 7
プリズム, 27
プリズム対, 27
ブリュースター角, 29
ブリュースター面, 28

- 分極, 36
分光学, 1, 4
分散, 47
分散関係, 39
分散補償ミラー, 27

He-Cd レーザー, 34
He-Ne レーザー, 32
偏光板, 76

ポインティング・ベクトル, 44, 45
飽和強度, 77
ボーズ・アインシュタイン分布, 8
ポッケルス効果, 24, 28, 65
HOMO-LUMO 遷移, 77
ポンピング, 13
ポンプ光, 73

マクスウェル方程式, 1, 36

密度行列, 55

モード同期, 24, 76
モード密度, 4
モル吸光係数, 46

誘電体多層膜, 27
誘電率, 37
誘導吸収, 75
誘導放出, 4, 10, 12
誘導ラマン利得, 75

横モード, 17
4 準位レーザー, 14, 16

ラビ周波数, 54
ラビ振動, 54
ランバート・ベアーの法則, 46

利得媒質, 19
量子エレクトロニクス, 1
量子光学, 1

ルビーレーザー, 30

レイリー・ジーンズの式, 7, 8, 12
レーザー, 1, 4
レーザーアブレーション, 4
レーザー核融合, 4
レーザー加工, 4
レーザー計測, 1
レーザー光学, 1
レーザー CVD, 4
レーザー媒質, 19, 29
レーザー発振, 19
レーザー冷却, 4
レーザー・ロッド, 29
レート, 10
レート方程式, 14
連続の式, 36, 44

ローレンツ関数, 47, 49
ローレンツ模型, 46, 57, 67

和周波発生, 65