偏光測定

室谷悠太

2023 年 4 月 20 日

本稿には偏光測定に関連する事項をまとめる。

目次

1 **偏光の表現** 2
- 1.1 ジョーンズベクトル 2
- 1.2 傾き角と楕円率角 2
- 1.3 ストークスパラメータ 3
- 1.4 円偏光度 5

2 **バランス検出** 6
- 2.1 回転角の測定 6
- 2.2 楕円率角の測定 8
- 2.3 波長板の選択について 11

3 **複屈折媒質による応答** 13
- 3.1 透過光・反射光の計算 13
- 3.2 ファラデー回転・カー回転 15
- 3.3 複屈折が小さい場合の近似式 17

4 **電気光学サンプリング** 17
- 4.1 GaP・ZnTe 17
- 4.2 GaSe 19
- 4.3 光カー効果の影響 20

付録 A 電気光学効果 22
- A.1 ポッケルス効果 22
- A.2 電気光学カー効果 22

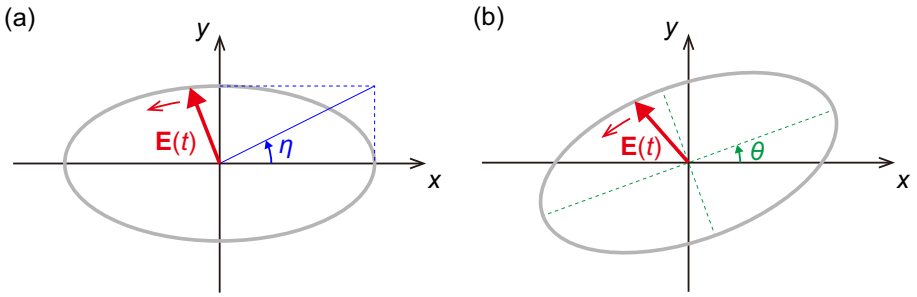

図 1　(a) 楕円率角 η の楕円偏光。赤い矢印が（ある時刻の）電場ベクトルを表し、灰色の楕円がその先端の軌跡を描いている。(b) 楕円偏光の長軸を傾き角 θ だけ回したもの。

1　偏光の表現

1.1　ジョーンズベクトル

光が z 方向に進んでいる場合、電場は xy 面内の 2 成分ベクトルとして表すことができる。特に振幅 A_i と位相 ϕ_i を用いてフェーザ表示（phasor notation）を行った

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} A_x e^{i\phi_x} \\ A_y e^{i\phi_y} \end{pmatrix} \tag{1}$$

をジョーンズベクトル（Jones vector）と言う。ジョーンズベクトルを真の電場 $\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t)$ に直す方法は何種類かある。まず、位相因子として $e^{-i\omega t+ikz}$（物理）と $e^{i\omega t-ikz}$（工学）のどちらをかけるかが問題になる。さらに、その後で実部を取るか、虚部を取るか、複素共役項を足すかという選択肢がある。例えば教科書 [2] では、$e^{-i\omega t+ikz}$ をかけた上で複素共役項を足し、

$$\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}e^{-i\omega t+ikz} + \text{c.c.} = \begin{pmatrix} 2A_x \cos(\omega t - kz - \phi_x) \\ 2A_y \cos(\omega t - kz - \phi_y) \end{pmatrix} \tag{2}$$

としている。もっとも、これらは単なる流儀の違いに過ぎず、本質的な違いはない。規格化されたジョーンズベクトルを偏光ベクトルと言う。

1.2　傾き角と楕円率角

光電場の軌跡は一般に楕円となる [1]。図 1(a) のように長軸を x 軸、短軸を y 軸に選ぶと、ジョーンズベクトルは

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = A\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi} \begin{pmatrix} \cos\eta \\ \mathrm{i}\sin\eta \end{pmatrix} \tag{3}$$

と表すことができる。A は振幅（$A > 0$）、ϕ は長軸成分の位相（$0 \le \phi < 2\pi$）、η は楕円率角（$-\pi/4 \le \eta \le \pi/4$）であり、$\eta = \pi/4$ が左回り円偏光、$\eta = -\pi/4$ が右回り円偏光に対応する[*1]。楕円率角 η の代わりに楕円率 $\tan\eta$ を考えることもある。

実際には楕円の長軸を x 軸と定義するより、実験室内に固定された xy 座標系を使って表した

[*1] 光の進行方向を $+z$ 方向とし、その向きから電場の回転を眺める流儀を採用した。

方が便利である。そこで、図 1(b) のように x 軸と長軸のなす角を θ として

$$\begin{aligned}\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} &= A\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi}\begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta \\ \sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \cos\eta \\ \mathrm{i}\sin\eta \end{pmatrix} \\ &= A\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi}\begin{pmatrix} \cos\theta\cos\eta - \mathrm{i}\sin\theta\sin\eta \\ \sin\theta\cos\eta + \mathrm{i}\cos\theta\sin\eta \end{pmatrix}\end{aligned} \tag{4}$$

と置き直そう（$0 \leq \theta < \pi$）。偏光は傾き角 θ と楕円率角 η によって指定され、他に振幅 A と位相 ϕ を決めれば電場の状態が一意に定まる。

x 軸方向の直線偏光は $\theta = \eta = 0$ とすれば得られる。ここからわずかにずれたものとして、θ と η が微小な光を考えると、それらの一次までで

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = A\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi}\begin{pmatrix} 1 \\ \theta + \mathrm{i}\eta \end{pmatrix} \tag{5}$$

となる。これより

$$\frac{E_y}{E_x} = \theta + \mathrm{i}\eta \tag{6}$$

を複素回転角とみなすことができる。しかし、だからといってこれを三角関数に放り込んだ

$$\begin{pmatrix} \cos(\theta + \mathrm{i}\eta) \\ \sin(\theta + \mathrm{i}\eta) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta\cosh\eta - \mathrm{i}\sin\theta\sinh\eta \\ \sin\theta\cosh\eta + \mathrm{i}\cos\theta\sinh\eta \end{pmatrix} \tag{7}$$

は (4) 式の偏光ベクトルとは一致しないので注意を要する[*2]。

1.3 ストークスパラメータ

ジョーンズベクトル (1) は A_x、A_y、ϕ_x、ϕ_y の 4 つの変数で表されていた。また、傾き角と楕円率角を用いた (4) 式の表現でもやはり 4 つの変数 A、ϕ、θ、η が使われている。しかし、これらのうち位相 ϕ に相当する自由度は物理的意味を持たない。したがって、光の偏光状態を規定する物理的自由度は実際には 3 つある。これら 3 つの自由度を全て同じ次元の量で表したのがストークスパラメータ

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} |E_x|^2 + |E_y|^2 \\ |E_x|^2 - |E_y|^2 \\ E_xE_y^* + E_yE_x^* \\ \mathrm{i}(E_xE_y^* - E_yE_x^*) \end{pmatrix} \tag{8}$$

である。I は係数を除いて光の強度に等しい。(1) 式のジョーンズベクトルを代入すると

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_x^2 + A_y^2 \\ A_x^2 - A_y^2 \\ 2A_xA_y\cos(\phi_y - \phi_x) \\ 2A_xA_y\sin(\phi_y - \phi_x) \end{pmatrix} \tag{9}$$

となり、(4) 式を代入すると

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A^2 \\ A^2\cos 2\theta\cos 2\eta \\ A^2\sin 2\theta\cos 2\eta \\ A^2\sin 2\eta \end{pmatrix} \tag{10}$$

[*2] η が小さいときのみ一致する。

となる。すぐ示せるように

$$I^2 = Q^2 + U^2 + V^2 \tag{11}$$

が成り立つため、4 成分あるストークスパラメータは偏光情報として冗長であるように見える。しかしこれら 4 つの量はいずれも実測するのが容易である上、(1) 式のように空間的に位相の揃った波として表せない無偏光成分も取り込めるという利点がある。すなわち、ジョーンズベクトルは波動方程式による計算と対応させやすいのに対して、ストークスパラメータは無偏光状態も含めて光の偏光を完全に記述できる。無偏光成分がある場合は $I^2 \geq Q^2 + U^2 + V^2$ が成り立ち、4 つの成分が全て独立になる。

ストークスパラメータを実測するには次のようにすればよい。まず、I と Q は偏光子を使って x 偏光成分と y 偏光成分の強度

$$I_x = |E_x|^2,\ I_y = |E_y|^2 \tag{12}$$

を別々に測れば得られる。一方、U は偏光子を斜め 45° に向け、$\mathbf{e}_{45} = (1/\sqrt{2})(1,1)$ 方向に偏光した成分と $\mathbf{e}_{135} = (1/\sqrt{2})(-1,1)$ 方向に偏光した成分の強度差を測れば求められる。すなわち、

$$I_{45} = |\mathbf{e}_{45} \cdot \mathbf{E}|^2,\ I_{135} = |\mathbf{e}_{135} \cdot \mathbf{E}|^2 \tag{13}$$

として

$$U = I_{45} - I_{135} \tag{14}$$

が成り立つ。ただ、実際には $I_{45} + I_{135} = I$ が成り立つので、I が既に分かっていれば I_{45} と I_{135} の両方を測る必要はない（例えば $U = 2I_{45} - I$）。最後に V は、左回り円偏光成分と右回り円偏光成分の強度差を測ることによって得られる。すなわち、それぞれに対応する偏光ベクトルを

$$\mathbf{e}_{\mathrm{L}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \mathrm{i} \end{pmatrix},\ \mathbf{e}_{\mathrm{R}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -\mathrm{i} \end{pmatrix} \tag{15}$$

として、

$$I_{\mathrm{L}} = |\mathbf{e}_{\mathrm{L}}^{\dagger}\mathbf{E}|^2,\ I_{\mathrm{R}} = |\mathbf{e}_{\mathrm{R}}^{\dagger}\mathbf{E}|^2 \tag{16}$$

により

$$V = I_{\mathrm{L}} - I_{\mathrm{R}} \tag{17}$$

と表せる。ただし今回も $I_{\mathrm{L}} + I_{\mathrm{R}} = I$ が成り立つので、I が既に分かっていれば I_{L} と I_{R} の両方を測る必要はない（例えば $V = 2I_{\mathrm{L}} - I$）。I_{L} や I_{R} を計測するには偏光子に四分の一波長板（後述）を組み合わせる必要があるが、完全に偏光している光に対しては、I、Q、U から (11) 式を使って V の絶対値を決めることができる。I_x、I_y、I_{45} を使って表せば、

$$|V| = \sqrt{4I_xI_y - (2I_{45} - I_x - I_y)^2} \tag{18}$$

である。

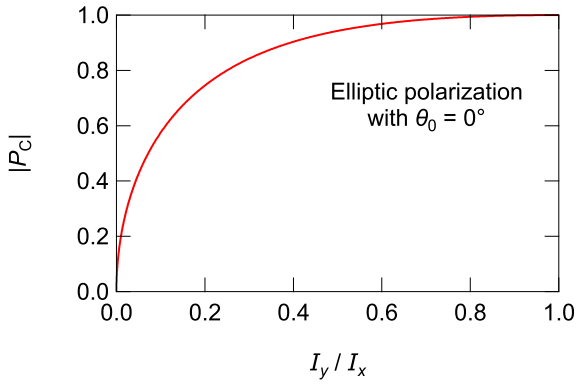

図 2　(a) 楕円率角 η の楕円偏光。赤い矢印が（ある時刻の）電場ベクトルを表し、灰色の楕円がその先端の軌跡を描いている。(b) 楕円偏光の長軸を傾き角 θ だけ回したもの。

1.4　円偏光度

ジョーンズベクトルを用いると、円偏光度は

$$P_{\mathrm{C}} = \frac{I_{\mathrm{L}} - I_{\mathrm{R}}}{I_{\mathrm{L}} + I_{\mathrm{R}}} = \frac{V}{I} \tag{19}$$

と表される。代表的な偏光に対しては

$$P_{\mathrm{C}} = \begin{cases} 1 & \text{右回り円偏光} \\ 0 & \text{直線偏光} \\ -1 & \text{左回り円偏光} \end{cases} \tag{20}$$

となり、より一般には $-1 \leq P_{\mathrm{C}} \leq 1$ である。ベクトルの z 成分を復活させると

$$V = \mathrm{i}(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_z \tag{21}$$

が成り立つから、偏光ベクトル

$$\mathbf{e} = \frac{\mathbf{E}}{|\mathbf{E}|} \tag{22}$$

を用いて

$$P_{\mathrm{C}} = \mathrm{i}(\mathbf{e} \times \mathbf{e}^*)_z \tag{23}$$

と書くこともできる。(18) 式から分かるように、符号を除いてコヒーレントな光の円偏光度を決定するには I_x、I_y、I_{45} を測定すればよい。すなわち

$$|P_{\mathrm{C}}| = \frac{\sqrt{4I_xI_y - (2I_{45} - I_x - I_y)^2}}{I_x + I_y} \tag{24}$$

である。

1.2 節の記法を用いると、楕円の長軸と短軸の強度比は $I_y/I_x = \tan^2\eta$ と与えられる。これの関数として円偏光度

$$P_{\mathrm{C}} = \sin 2\eta \tag{25}$$

の大きさをプロットしたのが図 2 である。$I_y/I_x = 2.5 \times 10^{-3}$ の場合、強度比を見る限りはまだ直線偏光に近いと考えられるが、円偏光度は既に $|P_{\mathrm{C}}| = 0.1$ に達している。また、$I_y/I_x = 0.39$ ではまだ十分円偏光に近づいていないと考えるのが自然だが、円偏光度は $|P_{\mathrm{C}}| = 0.9$ に及ぶ。このように、円偏光度は必ずしも「どのくらい円偏光に近いか」を表す直感的な指標にはなっていないことがある。ただ、光のヘリシティに依存する現象が (23) 式に比例する形で現れることもあるため、むしろ直感の方が間違っていると言うべきかもしれない。ちなみに、$|P_{\mathrm{C}}|$ が 0.99 に達するのは $I_y/I_x = 0.75$ のときである。

2 バランス検出

2.1 回転角の測定

速軸と遅軸で位相差 φ が付く波長板を考える（$0 \leq \varphi \leq \pi$）。それぞれの軸の向きを

$$\mathbf{e}_{\mathrm{f}} = \begin{pmatrix} \cos\alpha \\ \sin\alpha \end{pmatrix}, \ \mathbf{e}_{\mathrm{s}} = \begin{pmatrix} -\sin\alpha \\ \cos\alpha \end{pmatrix} \tag{26}$$

とすると、入射電場 $\mathbf{E}$ に対して透過電場は

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^{\mathrm{tr}} &= \begin{pmatrix} \mathbf{e}_{\mathrm{f}} & \mathbf{e}_{\mathrm{s}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\varphi/2} & 0 \\ 0 & \mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} {}^t\mathbf{e}_{\mathrm{f}} \\ {}^t\mathbf{e}_{\mathrm{s}} \end{pmatrix} \mathbf{E} \\ &= \begin{pmatrix} \cos(\varphi/2) - \mathrm{i}\cos 2\alpha \sin(\varphi/2) & -\mathrm{i}\sin 2\alpha \sin(\varphi/2) \\ -\mathrm{i}\sin 2\alpha \sin(\varphi/2) & \cos(\varphi/2) + \mathrm{i}\cos 2\alpha \sin(\varphi/2) \end{pmatrix} \mathbf{E} \end{aligned} \tag{27}$$

と与えられる[*3]。

半波長板に対しては $\varphi = \pi$ だから

$$\mathbf{E}^{\mathrm{tr}} = -\mathrm{i} \begin{pmatrix} \cos 2\alpha & \sin 2\alpha \\ \sin 2\alpha & -\cos 2\alpha \end{pmatrix} \mathbf{E} \tag{28}$$

が得られる。$\mathbf{E}$ として (4) 式を代入すると

$$\mathbf{E}^{\mathrm{tr}} = -\mathrm{i}A\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi} \begin{pmatrix} \cos(2\alpha - \theta)\cos\eta + \mathrm{i}\sin(2\alpha - \theta)\sin\eta \\ \sin(2\alpha - \theta)\cos\eta - \mathrm{i}\cos(2\alpha - \theta)\sin\eta \end{pmatrix} \tag{29}$$

となるから、半波長板は傾き角 θ を $2\alpha - \theta$ に変え、楕円率角 η を $-\eta$ に変える素子になっていることが分かる。前者はもともとの傾き角 θ に、それと速軸がなす角 $\alpha - \theta$ の二倍を加算したものと考えればよい。さて、(28) 式の x 成分及び y 成分の強度 $I_i = |E_i^{\mathrm{tr}}|^2$ $(i = x, y)$ は

$$I_x = |E_x|^2 \cos^2 2\alpha + |E_y|^2 \sin^2 2\alpha + (E_x E_y^* + E_y E_x^*) \sin 2\alpha \cos 2\alpha \tag{30}$$

$$I_y = |E_x|^2 \sin^2 2\alpha + |E_y|^2 \cos^2 2\alpha - (E_x E_y^* + E_y E_x^*) \sin 2\alpha \cos 2\alpha \tag{31}$$

となるので、和と差はそれぞれ

$$I_x + I_y = |E_x|^2 + |E_y|^2 \tag{32}$$

$$I_x - I_y = (|E_x|^2 - |E_y|^2) \cos 4\alpha + (E_x E_y^* + E_y E_x^*) \sin 4\alpha \tag{33}$$

と与えられる。ここに (4) 式を当てはめると、

$$I_x + I_y = I \tag{34}$$

$$I_x - I_y = I \cos 2\eta \cos(2\theta - 4\alpha) \tag{35}$$

[*3] このように入力 $\mathbf{E}$ と出力 $\mathbf{E}^{\mathrm{tr}}$ を結ぶ 2×2 行列をジョーンズ行列と呼ぶ。

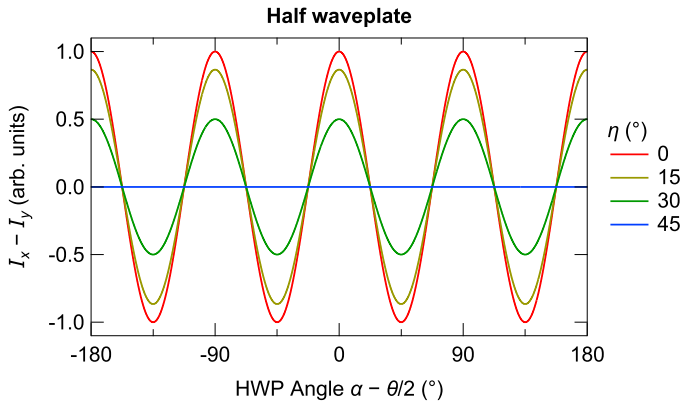

図 3　半波長板の角度 α を変えたときのバランス信号。(35) 式による。

となる[*4]。ただし $A^2 = I$ と書いた。半波長板の角度 α を回していくと、$I_x - I_y$ は 90° 周期の単純な正弦波を描く（図 3)。

光が何らかの変調を受けたとしよう。もともとの量に下付き添え字 0 を付け、変調によって生じた変化分には δ を付けて $I = I_0 + \delta I$、$\theta = \theta_0 + \delta\theta$、$\eta = \eta_0 + \delta\eta$ と表す。変化が小さければ、$I_x - I_y$ は

$$(I_x - I_y)_0 = I_0 \cos 2\eta_0 \cos(2\theta_0 - 4\alpha) \tag{36}$$

と

$$\begin{aligned}\delta(I_x - I_y) = \delta I \cdot \cos 2\eta_0 \cos(2\theta_0 - 4\alpha) \\ - \delta\eta \cdot 2I_0 \sin 2\eta_0 \cos(2\theta_0 - 4\alpha) \\ - \delta\theta \cdot 2I_0 \cos 2\eta_0 \sin(2\theta_0 - 4\alpha)\end{aligned} \tag{37}$$

の和によって与えられる。ここで、変調前の信号 $(I_x - I_y)_0$ が 0 となるように α を選んでみよう。そのためには $\cos(2\theta - 4\alpha) = 0$ が成り立つようにすればよいから

$$\alpha = \frac{\theta_0}{2} \pm \frac{\pi}{8} \tag{38}$$

となる。このとき

$$\frac{\delta(I_x - I_y)}{I_0} = \pm 2\delta\theta \cos 2\eta_0 \tag{39}$$

から回転角 $\delta\theta$ を決定することができる。以上の配置では変調前の信号が 0 となっているため、微小な変化分 $\delta(I_x - I_y)$ を高精度に測定することができる[*5]。このように、測定の前に信号が 0 となる状況を作っておくことを「バランスを取る」と言い、そこからの変化分を測定することを

[*4] (29) 式から直接求めてもよい。なお、これを計算する上で便利な関係式として

$$\begin{aligned}|E_x|^2 - |E_y|^2 &= A^2 \cos 2\theta \cos 2\eta \\ E_x E_y^* + E_y E_x^* &= A^2 \sin 2\theta \cos 2\eta \\ \mathrm{i}(E_x E_y^* - E_y E_x^*) &= A^2 \cos 2\theta \sin 2\eta\end{aligned}$$

が成り立つ。

[*5] 0 でない値からのずれを測るより、0 からのずれを測る方が一般に正確である。

「バランス検出」と言う。理想的な状況では直線偏光を用いて $\eta_0 = 0$ とするが、偏光が乱れて $\eta_0 \neq 0$ となっている場合でも $\cos 2\eta_0$ は 1 に近く、近似的に

$$\frac{\delta(I_x - I_y)}{I_0} = \pm 2\delta\theta \tag{40}$$

となることが期待される。

α の選択がまずくバランスが取れていない場合、(41) 式より強度変化 δI と楕円率角の変化 $\delta\eta$ も混ざってきてしまう。ただ、

$$\delta(I_x - I_y) = \left(\frac{\delta I}{I_0} - 2\delta\eta \tan 2\eta_0\right)(I_x - I_y)_0 - \delta\theta \cdot 2I_0 \cos 2\eta_0 \sin(2\theta_0 - 4\alpha) \tag{41}$$

と書き換えられることからも分かるように、これらに由来する信号は変調前の（崩れた）バランス信号 $(I_x - I_y)_0$ に比例して変化する。一方、$\delta\theta$ に由来する信号は α が多少ずれていても変化しにくい（α 依存性を見たとき、正弦波の頂点付近に位置しているため）。そこで、あえてバランスを少し崩したときに信号がどう変化するかを見ることにより、正しく $\delta\theta$ が測定できているかを検証できる。

理想的な状況における厳密な式を求めておこう。光としてはもともと $\theta_0 = \eta_0 = 0$ となっている直線偏光を用いるのが理想である[*6]。この場合は (38) 式に従って $\alpha = \pm\pi/8$ のどちらかを選び、

$$I_x - I_y = \pm(E_x E_y^* + E_y E_x^*) \tag{42}$$

を測定する。明らかに $E_y = 0$ のときにバランスが取れており、そこから微小な E_y が生じた場合、E_x と同位相の成分を精度よく抽出して測ることができる。(4) 式を当てはめると

$$\frac{I_x - I_y}{I_x + I_y} = \pm \sin 2\theta \cos 2\eta \tag{43}$$

が得られる。この式は θ や η が微少量でなくても成り立つ[*7]。

2.2 楕円率角の測定

四分の一波長板に対しては $\varphi = \pi/2$ だから

$$\mathbf{E}^{\mathrm{tr}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 - \mathrm{i}\cos 2\alpha & -\mathrm{i}\sin 2\alpha \\ -\mathrm{i}\sin 2\alpha & 1 + \mathrm{i}\cos 2\alpha \end{pmatrix} \mathbf{E} \tag{44}$$

となる。$\mathbf{E} \propto (1, 0)$ に対して $\alpha = \pm\pi/4$ とすると $\mathbf{E}^{\mathrm{tr}} \propto (1/\sqrt{2})(1, \mp\mathrm{i})$ となるから、四分の一波長板は直線偏光を円偏光にする機能を持っている。今度の強度は

$$\begin{aligned} I_x = \frac{1}{2}\big[&|E_x|^2(1 + \cos^2 2\alpha) + |E_y|^2 \sin^2 2\alpha \\ &+ (E_x E_y^* + E_y E_x^*)\sin 2\alpha \cos 2\alpha + \mathrm{i}(E_x E_y^* - E_y E_x^*)\sin 2\alpha\big] \end{aligned} \tag{45}$$

$$\begin{aligned} I_y = \frac{1}{2}\big[&|E_x|^2 \sin^2 2\alpha + |E_y|^2(1 + \cos^2 2\alpha) \\ &- (E_x E_y^* + E_y E_x^*)\sin 2\alpha \cos 2\alpha - \mathrm{i}(E_x E_y^* - E_y E_x^*)\sin 2\alpha\big] \end{aligned} \tag{46}$$

[*6] または、$\theta_0 = \pi/2$ であってもよい。

[*7] ただし、(39) 式などと異なり分母が（変調前の）I_0 ではなく（変調後の）I になっていることに注意。

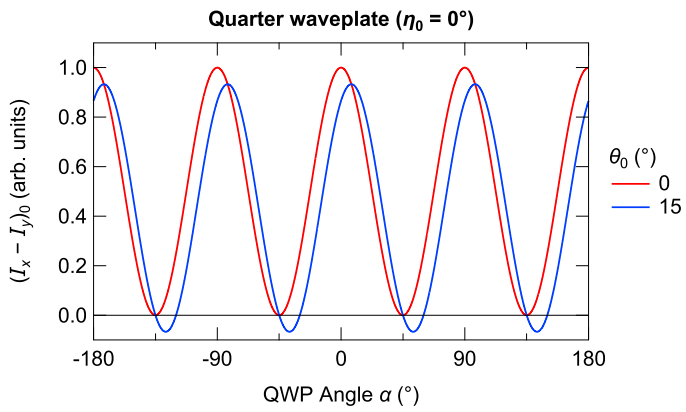

図 4　四分の一波長板の角度 α を変えたときのバランス信号。$\eta_0 = 0$ を固定し、θ_0 を変えてプロットした。(56) 式による。

となるので、和と差はそれぞれ

$$I_x + I_y = |E_x|^2 + |E_y|^2 \tag{47}$$

$$\begin{aligned} I_x - I_y = {} & \frac{1}{2}(|E_x|^2 - |E_y|^2)(1 + \cos 4\alpha) + \frac{1}{2}(E_x E_y^* + E_y E_x^*) \sin 4\alpha \\ & + \mathrm{i}(E_x E_y^* - E_y E_x^*) \sin 2\alpha \end{aligned} \tag{48}$$

と与えられる。あるいは θ と η を用いれば

$$I_x + I_y = I \tag{49}$$

$$\begin{aligned} I_x - I_y &= \frac{I}{2} \cos 2\eta \left[\cos 2\theta + \cos(2\theta - 4\alpha)\right] + I \cos 2\theta \sin 2\eta \sin 2\alpha \\ &= I \cos(2\theta - 2\alpha) \cos 2\eta \cos 2\alpha + I \cos 2\theta \sin 2\eta \sin 2\alpha \end{aligned} \tag{50}$$

となる。こちらは波長板の回転角 α を変えたときの依存性が少し複雑であり、$I_x - I_y$ は一般に 90° 周期の成分と 180° 周期の成分の和となっている。

見通しをよくするために、今回はまず $\theta_0 = \eta_0 = 0$ の理想的な状況を調べておこう。このときのバランス検出においては $\alpha = \pm\pi/4$ のどちらかを選び

$$I_x - I_y = \pm \mathrm{i}(E_x E_y^* - E_y E_x^*) \tag{51}$$

を測定する。今度も初めに $E_y = 0$ としておくとバランスが取れ、そこから生じる微小な E_y のうち、特に E_x と位相のずれた成分を測ることができる。具体的に計算すると

$$\frac{I_x - I_y}{I_x + I_y} = \pm \cos 2\theta \sin 2\eta \tag{52}$$

となる。これは (43) 式同様任意の θ、η に対して成り立つ。$\theta_0 = \eta_0 = 0$ として、微少量について展開すると

$$\frac{\delta(I_x - I_y)}{I_0} = \pm 2\delta\eta \tag{53}$$

となり、楕円率角が得られる。

実際の測定系では必ずしも $\theta_0 = \eta_0 = 0$ となっている保証はない。したがって、バランスを取ったところが自然に $\alpha = \pm\pi/4$ になっているとは限らない。(50) 式より、変調前の信号と変

調による変化分はそれぞれ

$$
\begin{aligned}
(I_x - I_y)_0 &= I_0 \left[\cos(2\theta_0 - 2\alpha)\cos 2\eta_0 \cos 2\alpha + \cos 2\theta_0 \sin 2\eta_0 \sin 2\alpha\right] && (54)\\
\delta(I_x - I_y) &= \delta I \cdot \left[\cos(2\theta_0 - 2\alpha)\cos 2\eta_0 \cos 2\alpha + \cos 2\theta_0 \sin 2\eta_0 \sin 2\alpha\right]\\
&\quad - \delta\theta \cdot 2I_0 \left[\sin(2\theta_0 - 2\alpha)\cos 2\eta_0 \cos 2\alpha + \sin 2\theta_0 \sin 2\eta_0 \sin 2\alpha\right]\\
&\quad - \delta\eta \cdot 2I_0 \left[\cos(2\theta_0 - 2\alpha)\sin 2\eta_0 \cos 2\alpha - \cos 2\theta_0 \cos 2\eta_0 \sin 2\alpha\right] && (55)
\end{aligned}
$$

と与えられる。初めに $\theta_0 \neq 0$、$\eta_0 = 0$ の場合を調べてみよう。このとき

$$
\begin{aligned}
(I_x - I_y)_0 &= I_0 \cos(2\theta_0 - 2\alpha)\cos 2\alpha && (56)\\
\delta(I_x - I_y) &= \delta I \cdot \cos(2\theta_0 - 2\alpha)\cos 2\alpha\\
&\quad - \delta\theta \cdot 2I_0 \sin(2\theta_0 - 2\alpha)\cos 2\alpha\\
&\quad + \delta\eta \cdot 2I_0 \cos 2\theta_0 \sin 2\alpha && (57)
\end{aligned}
$$

となる。図 4 に (56) 式の $(I_x - I_y)_0$ をプロットした。θ_0 によらず 90° 周期性を示すが、$\theta_0 \neq 0$ のときはバランスが取れる角度が二種類に分かれる。一つ目は

$$
\alpha = \pm\frac{\pi}{4} \tag{58}
$$

であり、このとき

$$
\frac{\delta(I_x - I_y)}{I_0} = \pm 2\delta\eta \cos 2\theta_0 \tag{59}
$$

となる。これは既に (52) 式で見たことと合致している。もう一つは

$$
\alpha = \theta_0 \pm \frac{\pi}{4} \tag{60}
$$

であり、このときは

$$
\frac{\delta(I_x - I_y)}{I_0} = -2\delta\theta \sin 2\theta_0 \pm 2\delta\eta \cos^2 2\theta_0 \tag{61}
$$

となる。$\delta\eta$ にかかっている $\cos 2\theta_0$ が二乗されるため、$\theta_0 = 0$ のときからのずれが大きくなるだけでなく、$\delta\theta$ による信号も混ざってきてしまうという問題がある。これらを避けるには、四分の一波長板の手前に半波長板を置き、$\theta_0 = 0$ としてしまえばよい。既に述べたように、回転角 β の半波長板は光の偏光状態を $\theta \to 2\beta - \theta$、$\eta \to -\eta$ と変化させる。したがって $\beta = \theta_0/2$ とすれば、光が四分の一波長板に入射する時点で $\theta_0 = 0$ に変換されている一方、η の情報は符号が変わるだけで保たれている。その状態で四分の一波長板を使ってバランスを取れば、自然に $\theta_0 = 0$ かつ $\alpha = \pm\pi/4$ の条件を作ることができる。

しかし、実際には四分の一波長板を回したときに図 4 のようなバランス信号が現れることは少ない。むしろ $\theta_0 = 0$、$\eta_0 \neq 0$ の方が現実に近い状況を与える。このときは

$$
\begin{aligned}
(I_x - I_y)_0 &= I_0 \left(\cos 2\eta_0 \cos^2 2\alpha + \sin 2\eta_0 \sin 2\alpha\right) && (62)\\
\delta(I_x - I_y) &= \delta I \cdot \left(\cos 2\eta_0 \cos^2 2\alpha + \sin 2\eta_0 \sin 2\alpha\right)\\
&\quad + \delta\theta \cdot 2I_0 \cos 2\eta_0 \sin 2\alpha \cos 2\alpha\\
&\quad - \delta\eta \cdot 2I_0 \left(\sin 2\eta_0 \cos^2 2\alpha - \cos 2\eta_0 \sin 2\alpha\right) && (63)
\end{aligned}
$$

となる。図 5 に (62) 式の $(I_x - I_y)_0$ をプロットした。図から見て取れるように、$\eta_0 \neq 0$ とすると $\alpha = \pm\pi/4$ のうち片方の近くでは解がなくなり、もう片方の近くでは解が 2 個になる。もと

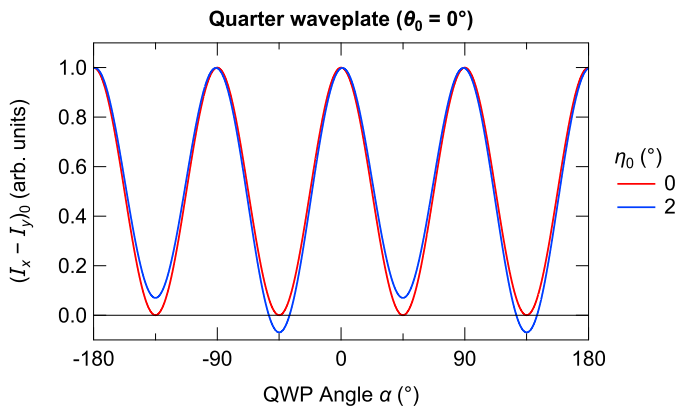

図 5　四分の一波長板の角度 α を変えたときのバランス信号。$\eta_0 = 0$ を固定し、θ_0 を変えてプロットした。(56) 式による。

もとの角度 $\alpha = \pm\pi/4$ のままにしておくと

$$(I_x - I_y)_0 = \pm I_0 \sin 2\eta_0 \tag{64}$$

$$\begin{aligned}\delta(I_x - I_y) &= \pm\delta I \cdot \sin 2\eta_0 \\ &\quad \pm \delta\eta \cdot 2I_0 \cos 2\eta_0\end{aligned} \tag{65}$$

となり、バランスが取れない。その結果 $\delta(I_x - I_y)$ にも強度変化 δI が混ざってしまう。ではバランスの取れたところではどうなるだろうか。このときは δI の係数は 0 になるが、$\delta\theta$ の係数は一般に 0 にならないため、今度は偏光回転の信号が混ざる。バランスが取れる α の値を η_0 の関数として図 6(a) にプロットした。これらの α において、(63) 式中の $\delta\eta$ の係数は図 6(b) のようになる。η_0 が小さければこの係数は概ね ± 1 である。一方、$\delta\theta$ の係数は図 6(c) のようになる。$\eta_0 = 0$ では 0 であるが、$\eta_0 \neq 0$ とすると急速に増大する。$\delta\eta$ を正確に計測するには、η_0 を十分 0 に近づけるか、$\delta\theta = 0$ となるような条件を作り出さなければならないことが分かる。

2.3　波長板の選択について

波長板によって付く位相差 φ が任意の場合、

$$I_x + I_y = I \tag{66}$$

$$\begin{aligned}I_x - I_y &= I\left(\cos^2\frac{\varphi}{2} + \cos 4\alpha \sin^2\frac{\varphi}{2}\right)\cos 2\theta \cos 2\eta \\ &\quad + I \sin 4\alpha \sin^2\frac{\varphi}{2} \sin 2\theta \cos 2\eta \\ &\quad + I \sin 2\alpha \sin\varphi \cos 2\theta \sin 2\eta\end{aligned} \tag{67}$$

が成り立つ。理想的な入射光 $\theta_0 = \eta_0 = 0$ を仮定すると

$$(I_x - I_y)_0 = I_0\left(\cos^2\frac{\varphi}{2} + \cos 4\alpha \sin^2\frac{\varphi}{2}\right) \tag{68}$$

$$\begin{aligned}\delta(I_x - I_y) &= \delta I \cdot \left(\cos^2\frac{\varphi}{2} + \cos 4\alpha \sin^2\frac{\varphi}{2}\right) \\ &\quad + \delta\theta \cdot 2I_0 \sin 4\alpha \sin^2\frac{\varphi}{2} \\ &\quad + \delta\eta \cdot 2I_0 \sin 2\alpha \sin\varphi\end{aligned} \tag{69}$$

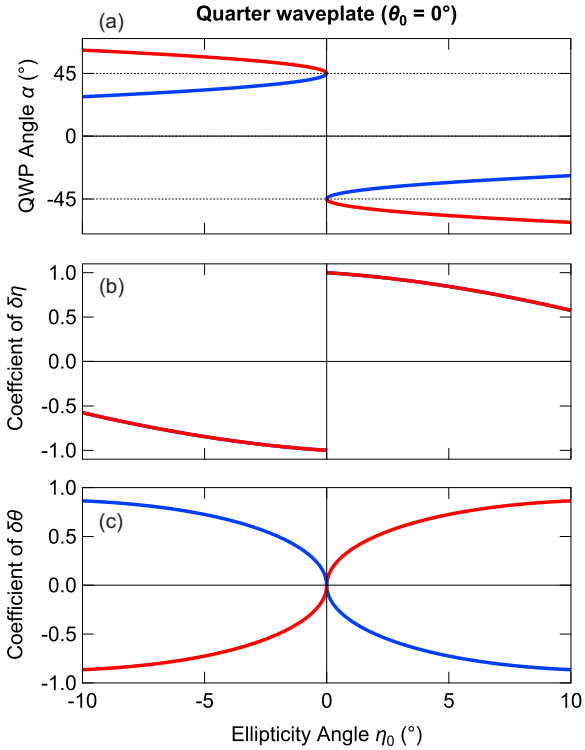

図 6　(a) $\theta_0 = 0$、$\eta_0 \neq 0$ の場合にバランスが取れる四分の一波長板の角度 α。(b) 当該の α において検出される $\delta\eta$ の係数。赤線と青線は重なり合っている。(c) 混ざり込む $\delta\theta$ の係数。

となる。バランス検出を行うためには

$$\cos^2\frac{\varphi}{2} + \cos 4\alpha \sin^2\frac{\varphi}{2} = 0 \tag{70}$$

が満たされていなければならない。このとき強度変化 δI による信号は恒等的に消え、$\delta\theta$ と $\delta\eta$ による信号だけが残る。前者を選択的に検出する配置を探すために、(70) 式と

$$\sin 2\alpha \sin\varphi = 0 \tag{71}$$

を連立してみよう。これらを同時に満たす解は

$$\varphi = \pi, \quad \alpha = \pm\frac{\pi}{8} \tag{72}$$

しかない。このとき $\sin 4\alpha \sin^2\varphi/2 = \pm 1$ となるから、幸いにも $\delta\theta$ の検出感度は考えうる最大値となっている。これは 2.1 節で考察したように半波長板を用いたバランス検出に他ならない。一方、$\delta\eta$ を選択的に検出するために、(70) 式と

$$\sin 4\alpha \sin^2\frac{\varphi}{2} = 0 \tag{73}$$

を連立すると、

$$\varphi = \frac{\pi}{2}, \quad \alpha = \pm\frac{\pi}{4} \tag{74}$$

が得られる。このとき $\sin 2\alpha \sin\varphi = \pm 1$ だから、こちらも $\delta\eta$ の検出感度は考えうる最大値になっている。これは 2.1 節で考察したように四分の一波長板を用いたバランス検出である。以上

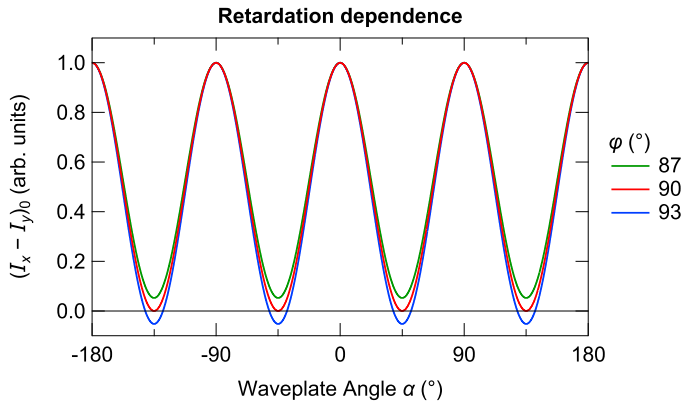

図 7　(a) 理想的な直線偏光（$\theta_0 = 0$、$\eta_0 = 0$）を用い、波長板によって付く位相差 φ を変えたときのバランス信号。$\varphi = 90^\circ$ が四分の一波長板に相当する。

のように、半波長板と四分の一波長板は回転角 $\delta\theta$ と楕円率角 $\delta\eta$ を独立に測るという目的から自然に導かれる選択肢となっている。

なお、(68) 式は α について単純な 90° 周期性を示すから、入射光が理想的な直線偏光である限り、真の四分の一波長板からずれていても（すなわち $\varphi \neq \pi/2$ でも）図 5 のような非対称なバランス信号は生じない。図 7 のように、バランス信号の底が上下するだけである。よって、実験的に観測されるバランスの非対称性を説明するには有限の楕円率角 $\eta_0 \neq 0$ を考える必要がある。

3　複屈折媒質による応答

3.1　透過光・反射光の計算

ここからは実際の媒質による複屈折の計算に入る。誘電率テンソル

$$\begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \tag{75}$$

を持つ物質を考える。z 方向に進む光は純粋な横波として伝播するから、以下では電場の z 成分を省略し、誘電率テンソルも

$$\begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} \end{pmatrix} \tag{76}$$

と簡略化する。

誘電率テンソル (76) の固有値問題

$$\begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_\pm \\ Y_\pm \end{pmatrix} = \epsilon_\pm \begin{pmatrix} X_\pm \\ Y_\pm \end{pmatrix} \tag{77}$$

を解くと、固有値は

$$\epsilon_\pm = \epsilon \pm \delta \tag{78}$$

ただし

$$\epsilon = \frac{\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}}{2}, \quad \delta = \sqrt{\left(\frac{\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}}{2}\right)^2 + \epsilon_{xy}\epsilon_{yx}} \tag{79}$$

と求まる。固有モードを用いて、電場を

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = E_+ \begin{pmatrix} X_+ \\ Y_+ \end{pmatrix} + E_- \begin{pmatrix} X_- \\ Y_- \end{pmatrix} \tag{80}$$

と展開しよう。これは行列により

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} X_+ & X_- \\ Y_+ & Y_- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_+ \\ E_- \end{pmatrix} \tag{81}$$

とも表せる。逆変換は

$$\begin{pmatrix} E_+ \\ E_- \end{pmatrix} = \frac{1}{X_+Y_- - X_-Y_+} \begin{pmatrix} Y_- & -X_- \\ -Y_+ & X_+ \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} \tag{82}$$

である[*8]。分母が 0 にならないこと、つまり $X_+Y_- - X_-Y_+ \neq 0$ であることは固有ベクトルが完全系を張るための条件であり[*9]、通常は満たされている。

$E_\pm$ は屈折率

$$n_\pm = \sqrt{\epsilon_\pm} \tag{83}$$

を感じながら独立に伝播する。すなわち、それぞれに対する振幅透過率 $t_\pm$ や振幅反射率 $r_\pm$ は屈折率 n に依存する共通の関数 $t(n)$、$r(n)$ を用いて

$$t_\pm = t(n_\pm), \quad r_\pm = r(n_\pm) \tag{84}$$

と表すことができる。$t(n)$ や $r(n)$ の具体形は考えている状況に依存する。透過を例に取り、物質から出てくる光の電場を xy 座標系で書くと

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_x^{\mathrm{tr}} \\ E_y^{\mathrm{tr}} \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} X_+ & X_- \\ Y_+ & Y_- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_+^{\mathrm{tr}} \\ E_-^{\mathrm{tr}} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} X_+ & X_- \\ Y_+ & Y_- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t_+ & 0 \\ 0 & t_- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_+^{\mathrm{in}} \\ E_-^{\mathrm{in}} \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{X_+Y_- - X_-Y_+} \begin{pmatrix} X_+ & X_- \\ Y_+ & Y_- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t_+ & 0 \\ 0 & t_- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Y_- & -X_- \\ -Y_+ & X_+ \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^{\mathrm{in}} \\ E_y^{\mathrm{in}} \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{85}$$

となる。一行目の変形では (81) 式を用い、二行目では振幅透過率によって入射光と透過光を結び、三行目では (82) 式を用いた。簡単のため、入射光が x 方向に偏光しているとして

$$\begin{pmatrix} E_x^{\mathrm{in}} \\ E_y^{\mathrm{in}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_0 \\ 0 \end{pmatrix} \tag{86}$$

と置くと、

$$E_x^{\mathrm{tr}} = \left(\frac{t_+ + t_-}{2} + \frac{t_+ - t_-}{2} \frac{X_+Y_- + X_-Y_+}{X_+Y_- - X_-Y_+} \right) E_0 \tag{87}$$

$$E_y^{\mathrm{tr}} = \frac{(t_+ - t_-)Y_+Y_-}{X_+Y_- - X_-Y_+} E_0 \tag{88}$$

[*8] 固有ベクトルが正規直交系になっている場合は、より簡単に

$$\begin{pmatrix} E_+ \\ E_- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} X_+ & Y_+ \\ X_- & Y_- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}$$

と表せるが、これは常に成り立つわけではない。

[*9] もう少し簡単に言うと、$(X_+, Y_+) \nparallel (X_-, Y_-)$ という条件である。

となる。これらから $X_\pm$ と $Y_\pm$ を消去するために、(77) 式より

$$X_\pm = \frac{\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy} \pm 2\delta}{2\epsilon_{yx}} Y_\pm \tag{89}$$

が成り立つことを用いると

$$E_x^{\mathrm{tr}} = \left(\frac{t_+ + t_-}{2} + \frac{t_+ - t_-}{2} \frac{\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}}{2\delta} \right) E_0 \tag{90}$$

$$E_y^{\mathrm{tr}} = \frac{(t_+ - t_-)\epsilon_{yx}}{2\delta} E_0 \tag{91}$$

が得られる[*10]。反射光についても $t_\pm \to r_\pm$ と置き換えれば記述でき

$$E_x^{\mathrm{re}} = \left(\frac{r_+ + r_-}{2} + \frac{r_+ - r_-}{2} \frac{\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}}{2\delta} \right) E_0 \tag{92}$$

$$E_y^{\mathrm{re}} = \frac{(r_+ - r_-)\epsilon_{yx}}{2\delta} E_0 \tag{93}$$

となる。

3.2 ファラデー回転・カー回転

偏光回転の例として、面直方向に磁化を持つ等方的な磁性体を考えてみよう。これは

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}, \quad \epsilon_{xy} = -\epsilon_{yx} \tag{94}$$

という状況に相当する。このとき

$$\delta = \mathrm{i}\epsilon_{xy} \tag{95}$$

となるので[*11]

$$E_x^{\mathrm{tr}} = \frac{t_+ + t_-}{2} E_0 \tag{96}$$

$$E_y^{\mathrm{tr}} = \mathrm{i}\frac{(t_+ - t_-)}{2} E_0 \tag{97}$$

が得られる。

空気中に厚み L の試料があるとして、内部での多重反射を無視すると、振幅透過率は

$$t_\pm = \frac{2n_\pm}{n_\pm + 1} \cdot e^{\mathrm{i}n_\pm \omega L/c} \cdot \frac{2}{1 + n_\pm} \tag{98}$$

と与えられる。屈折率を

$$n_\pm = n \pm \frac{\Delta n}{2} \tag{99}$$

と書き直し、係数では $n_+ \simeq n_- \simeq n$ と近似できるとすると

$$t_\pm \simeq \frac{4n}{(1+n)^2} e^{\mathrm{i}(n \pm \Delta n/2)\omega L/c} \tag{100}$$

[*10] (89) 式は $\epsilon_{yx} \neq 0$ であることを仮定しているが、$\epsilon_{yx} = 0$ の場合も、最終的に辿り着く結果は同じである。
[*11] 代わりに $\delta = -\mathrm{i}\epsilon_{xy}$ を選ぶと Δn の符号が反転するが、最終的に得られる結果は同じである。

となるから、

$$\begin{pmatrix} E_x^{\mathrm{tr}} \\ E_y^{\mathrm{tr}} \end{pmatrix} \simeq \frac{4n}{(1+n)^2} e^{\mathrm{i}n\omega L/c} E_0 \begin{pmatrix} \cos\Psi \\ \sin\Psi \end{pmatrix} \tag{101}$$

ただし

$$\Psi = -\frac{\Delta n \omega d}{2c} \tag{102}$$

が得られる。

Δn が実数なら Ψ も実数となり、(101) 式は xy 面内で角度 Ψ だけ回転した直線偏光になる[*12]。これは円複屈折、すなわち右回り円偏光と左回り円偏光の感じる屈折率が異なることの表れであり、ファラデー回転と呼ばれている。一方、Δn が純虚数なら $\Psi = \mathrm{i}\Psi''$ も純虚数であり、

$$\begin{pmatrix} E_x^{\mathrm{tr}} \\ E_y^{\mathrm{tr}} \end{pmatrix} \simeq \frac{4n}{(1+n)^2} e^{\mathrm{i}n\omega L/c} E_0 \begin{pmatrix} \cosh\Psi'' \\ \mathrm{i}\sinh\Psi'' \end{pmatrix} \tag{103}$$

は x 軸を長軸とする楕円偏光になる[*13]。これは円二色性、すなわち右回り円偏光と左回り円偏光に対する吸収が異なることの表れである。$L \to \infty$ の極限では片方の円偏光成分が早く吸収され、純粋な円偏光に近づく。もちろん、このときは一般に n も虚部を持つため、残留する円偏光自体も弱くなっていく。Δn が複素数の場合には、一般に透過光は軸の傾いた楕円偏光になる。

なお、試料内を多重反射した光に対しては振幅反射率が繰り返し乗算されるが、位相のずれ Ψ は L を光の経験した長さで置き換えれば得られる。

今度は反射を考えよう。そのために (96)、(97) 式で $t_\pm \to r_\pm$ と置き換え

$$E_x^{\mathrm{re}} = \frac{r_+ + r_-}{2} E_0 \tag{104}$$

$$E_y^{\mathrm{re}} = \mathrm{i}\frac{(r_+ - r_-)}{2} E_0 \tag{105}$$

を考える。試料内での多重反射を無視すると、Δn の一次までで

$$\begin{aligned} r_\pm &= \frac{1-n_\pm}{1+n_\pm} \\ &\simeq \frac{1-n}{1+n} \mp \frac{2}{(1+n)^2}\frac{\Delta n}{2} \end{aligned} \tag{106}$$

だから、

$$E_x^{\mathrm{re}} \simeq \frac{1-n}{1+n} E_0 \tag{107}$$

$$E_y^{\mathrm{re}} \simeq -\frac{\mathrm{i}\Delta n}{(1+n)^2} E_0 \tag{108}$$

が得られる。Δn が十分小さければ、複素回転角を

$$\begin{aligned} \theta + \mathrm{i}\eta &= \frac{E_y^{\mathrm{re}}}{E_x^{\mathrm{re}}} \\ &\simeq -\frac{\mathrm{i}\Delta n}{1-n^2} \end{aligned} \tag{109}$$

と求めることができる。$\theta \neq 0$ の場合がいわゆるカー回転に他ならない。

[*12] 1.2 節の記法では、傾き角 $\theta = \Psi$、楕円率 $\tan\eta = 0$ に相当。

[*13] 傾き角 $\theta = 0$、楕円率 $\tan\eta = \tanh\Psi''$ に相当。

3.3 複屈折が小さい場合の近似式

3.1 節の計算に戻る。誘電率の差が十分小さく

$$|\delta| \ll |\epsilon| \tag{110}$$

ならば、

$$n \simeq \sqrt{\epsilon}, \quad \Delta n \simeq \frac{\delta}{n} \tag{111}$$

と近似できる。さらに試料内で $E_\pm$ 成分の獲得する位相差が十分小さい場合、すなわち試料の厚みを L として

$$\left|\frac{\Delta n \omega L}{c}\right| \ll 1 \tag{112}$$

のときは、(84) 式より

$$t_\pm \simeq t(n) \pm \frac{\partial t(n)}{\partial n}\frac{\Delta n}{2} \tag{113}$$

が成り立つ（誤差は $\Delta n \omega L/c$ 及び Δn について高次)。これらを (90)、(91) 式に当てはめると

$$E_x^{\mathrm{tr}} \simeq \left[t(n) + \frac{\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}}{4n}\frac{\partial t(n)}{\partial n}\right] E_0 \tag{114}$$

$$E_y^{\mathrm{tr}} \simeq \frac{\epsilon_{yx}}{2n}\frac{\partial t(n)}{\partial n} E_0 \tag{115}$$

が得られる。以上は複屈折の効果が弱い場合には常に成り立つ結果である。$\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}$ が小さければ E_x^{tr} はほぼ $t(n)$ で決まるので、(114) 式右辺角かっこ内第二項は無視してよい。

4 電気光学サンプリング

4.1 GaP・ZnTe

前章の計算は電気光学サンプリングにも応用できる。GaP や ZnTe など、(110) 面の閃亜鉛鉱型結晶を考えよう。結晶の [100]、[010]、[001] 方向をそれぞれ a、b、c 軸として、まず電場を abc 座標系で表す（abc 座標系で測ったベクトルやテンソルにはチルダを付けて明示する)。テラヘルツ電場 $\tilde{\boldsymbol{\mathcal{E}}} = (\mathcal{E}_a, \mathcal{E}_b, \mathcal{E}_c)$ が加わった際の誘電率テンソルは、ポッケルス効果を考慮して

$$\tilde{\epsilon} = \begin{pmatrix} n^2 & 4d_{36}\mathcal{E}_c & 4d_{36}\mathcal{E}_b \\ 4d_{36}\mathcal{E}_c & n^2 & 4d_{36}\mathcal{E}_a \\ 4d_{36}\mathcal{E}_b & 4d_{36}\mathcal{E}_a & n^2 \end{pmatrix} \tag{116}$$

と与えられる（付録 A.1 参照)。(110) 面の結晶を使う場合、テラヘルツ波にせよゲート光にせよ光が入射するのは [110] 方向である。そこで、以下の計算を簡単にするために、[$\bar{1}$10]、[001]、[110] 方向をそれぞれ X、Y、X 軸とする XYZ 座標系を作る。この座標系で測ったテラヘルツ電場を $\boldsymbol{\mathcal{E}}' = (\mathcal{E}_X, \mathcal{E}_Y, \mathcal{E}_Z)$ とすると、変換則は

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}' = M\tilde{\boldsymbol{\mathcal{E}}} \quad \Leftrightarrow \quad \tilde{\boldsymbol{\mathcal{E}}} = M^{\mathrm{T}}\boldsymbol{\mathcal{E}}' \tag{117}$$

ただし

$$M = \begin{pmatrix} -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \end{pmatrix} \tag{118}$$

と与えられる。ゲート光の電場も同じ変換則に従うため、XYZ 系で見た誘電率テンソルは

$$\begin{aligned} \epsilon' &= M\tilde{\epsilon}M^{\mathrm{T}} \\ &= \begin{pmatrix} n^2 - 4d_{36}\mathcal{E}_Y & -4d_{36}\mathcal{E}_X & 0 \\ -4d_{36}\mathcal{E}_X & n^2 & 4d_{36}\mathcal{E}_Z \\ 0 & 4d_{36}\mathcal{E}_Z & n^2 + 4d_{36}\mathcal{E}_Y \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{119}$$

となる。Z 方向に進むテラヘルツ波は $\mathcal{E}_Z = 0$ を満たすから、XY 面内の応答は Z 方向の応答から独立する。したがって、左上 2×2 部分だけを取り出し

$$\epsilon' = \begin{pmatrix} n^2 - 4d_{36}\mathcal{E}_Y & -4d_{36}\mathcal{E}_X \\ -4d_{36}\mathcal{E}_X & n^2 \end{pmatrix} \tag{120}$$

を考えればよい。XY 座標系で $(\cos\beta, \sin\beta)$ の向きを x 軸、$(-\sin\beta, \cos\beta)$ の向きを y 軸とすると、xy 座標系で測ったテラヘルツ電場 $\boldsymbol{\mathcal{E}} = (\mathcal{E}_x, \mathcal{E}_y)$ は

$$\boldsymbol{\mathcal{E}} = R\boldsymbol{\mathcal{E}}' \quad \Leftrightarrow \quad \boldsymbol{\mathcal{E}}' = R^{\mathrm{T}}\boldsymbol{\mathcal{E}} \tag{121}$$

ただし

$$R = \begin{pmatrix} \cos\beta & \sin\beta \\ -\sin\beta & \cos\beta \end{pmatrix} \tag{122}$$

と与えられる。この座標系で測った誘電率テンソルは、したがって

$$\begin{aligned} \epsilon &= R\epsilon' R^{\mathrm{T}} \\ &= \begin{pmatrix} n^2 & 0 \\ 0 & n^2 \end{pmatrix} - 4d_{36} \begin{pmatrix} 3c^2 s\mathcal{E}_x + c(c^2 - 2s^2)\mathcal{E}_y & c(c^2 - 2s^2)\mathcal{E}_x - s(2c^2 - s^2)\mathcal{E}_y \\ c(c^2 - 2s^2)\mathcal{E}_x - s(2c^2 - s^2)\mathcal{E}_y & s(s^2 - 2c^2)\mathcal{E}_x + 3s^2 c\mathcal{E}_y \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{123}$$

となる。ただし $s = \sin\beta$、$c = \cos\beta$ と略した。

電場 $\boldsymbol{\mathcal{E}}$ が十分弱ければ、(123) 式の非対角成分は小さい。この場合に 3.3 節の計算を適用しよう。四分の一波長板を用いたバランス検出を行うと、(51) 式より、

$$I_x - I_y = 2\,\mathrm{Im}\, E_y E_x^* \tag{124}$$

が測定される。ここで (114)、(115) 式を用いると

$$E_y E_x^* = |E_0|^2 \frac{\epsilon_{yx}}{2n} \left(\frac{\partial t}{\partial n} t^* + \frac{\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}}{4n} \left| \frac{\partial t}{\partial n} \right|^2 \right) \tag{125}$$

となるが、透明な電気光学結晶では n、ϵ_{yx}、ϵ_{xx} 等が全て実数になるから

$$I_x - I_y = |E_0|^2 \frac{\epsilon_{yx}}{n}\, \mathrm{Im} \left(\frac{\partial t}{\partial n} t^* \right) \tag{126}$$

を得る。結晶内での反射を無視すると、振幅透過率は

$$t = \frac{4n}{(1+n)^2} \mathrm{e}^{\mathrm{i}n\omega L/c} \tag{127}$$

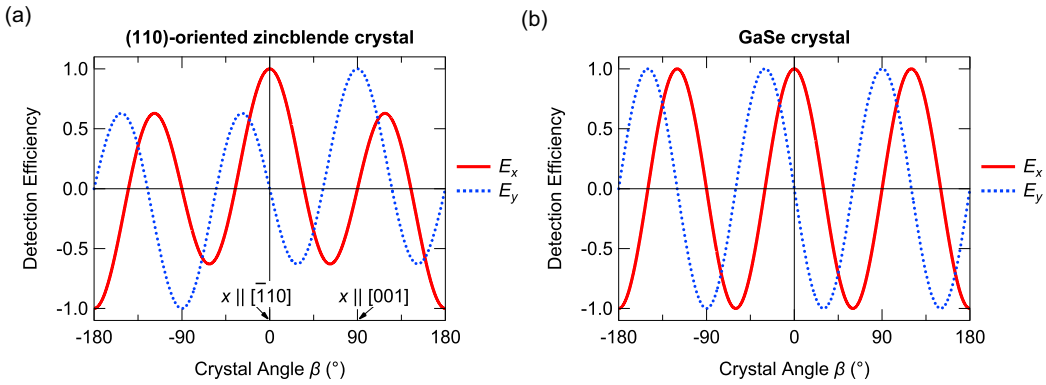

図 8　(a) (110) 面の閃亜鉛鉱型結晶を用い、面内角度 β を変えたときの $\mathcal{E}_x$ 及び $\mathcal{E}_y$ の検出感度。入射するゲート光は x 方向に直線偏光している。(b) (0001) 面の GaSe 結晶を用いた場合。

なので、

$$\frac{\partial t}{\partial n}t^* = \left[\frac{\partial}{\partial n}\frac{4n}{(1+n)^2}\right]\frac{4n}{(1+n)^2} + \frac{\mathrm{i}\omega L}{c}|t|^2 \tag{128}$$

である。これより

$$I_x - I_y = |tE_0|^2\frac{\omega L}{nc}\epsilon_{yx} \tag{129}$$

となる。テラヘルツ電場がないときの透過光強度は $(I_x + I_y)_0 = |tE_0|^2$ だから

$$\frac{I_x - I_y}{(I_x + I_y)_0} = \frac{\omega L}{nc}\epsilon_{yx} \tag{130}$$

が得られる。(123) 式の結果を代入すると、

$$\frac{I_x - I_y}{(I_x + I_y)_0} = -\frac{4d_{36}\omega L}{nc}\left(\mathcal{E}_x\frac{3\cos 3\beta + \cos\beta}{4} + \mathcal{E}_y\frac{-3\sin 3\beta + \sin\beta}{4}\right) \tag{131}$$

となる。

図 8(a) に、結晶の回転角 β の関数として $\mathcal{E}_x$ の検出感度 $(3\cos 3\beta + \cos\beta)/4$ 及び $\mathcal{E}_y$ の検出感度 $(-3\sin 3\beta + \sin\beta)/4$ をプロットした。$\beta = 0, \pi$ とすると

$$\frac{I_x - I_y}{(I_x + I_y)_0} = \mp\frac{4d_{36}\omega L}{nc}\mathcal{E}_x \tag{132}$$

となり、$\mathcal{E}_x$ を最も効率よく検出することができる。一方、$\beta = \pm\pi/2$ のときには

$$\frac{I_x - I_y}{(I_x + I_y)_0} = \mp\frac{4d_{36}\omega L}{nc}\mathcal{E}_y \tag{133}$$

となり、$\mathcal{E}_y$ が最も効率よく検出される。図 8(a) の依存性は実験的にもよく見る形状である。

4.2　GaSe

次に GaSe を電気光学結晶として用いた場合を考える。GaSe は脆い物質であり、面として使えるのは劈開によって得られる (0001) 面に限られる。光がここに垂直入射する場合、二次の非線形分極は ab 面内にしか生じないので、初めから c 軸方向を無視して考えることができる。テ

ラヘルツ電場 $\tilde{\boldsymbol{\mathcal{E}}} = (\mathcal{E}_a, \mathcal{E}_b)$ がかかっているときの誘電率テンソルは、ポッケルス効果を考慮すると

$$\tilde{\epsilon} = \begin{pmatrix} n^2 - 4d_{22}\mathcal{E}_b & -4d_{22}\mathcal{E}_a \\ -4d_{22}\mathcal{E}_a & n^2 + 4d_{22}\mathcal{E}_b \end{pmatrix} \tag{134}$$

となる（付録 A.1 参照）。ab 座標系で $(\cos\beta, \sin\beta)$ の向きを x 軸、$(-\sin\beta, \cos\beta)$ の向きを y 軸とすると、xy 座標系で測った電場 $\boldsymbol{\mathcal{E}} = (\mathcal{E}_x, \mathcal{E}_y)$ は、(122) 式の R を用いて

$$\boldsymbol{\mathcal{E}} = R\tilde{\boldsymbol{\mathcal{E}}} \quad \Leftrightarrow \quad \tilde{\boldsymbol{\mathcal{E}}} = R^{\mathrm{T}}\boldsymbol{\mathcal{E}} \tag{135}$$

と与えられる。これより誘電率テンソルは

$$\begin{aligned} \epsilon &= R\tilde{\epsilon}R^{\mathrm{T}} \\ &= \begin{pmatrix} n^2 & 0 \\ 0 & n^2 \end{pmatrix} - 4d_{22} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x \sin 3\beta + \mathcal{E}_y \cos 3\beta & \mathcal{E}_x \cos 3\beta - \mathcal{E}_y \sin 3\beta \\ \mathcal{E}_x \cos 3\beta - \mathcal{E}_y \sin 3\beta & -\mathcal{E}_x \sin 3\beta - \mathcal{E}_y \cos 3\beta \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{136}$$

となる。(130) 式を用いると、バランス信号として

$$\frac{I_x - I_y}{(I_x + I_y)_0} = -\frac{4d_{22}\omega L}{nc}\left(\mathcal{E}_x \cos 3\beta - \mathcal{E}_y \sin 3\beta\right) \tag{137}$$

が得られる。結晶の三回対称性を反映し、信号は単純な 120° 周期性を示す。図 8(b) に $\mathcal{E}_x$ の検出感度 $\cos 3\beta$ 及び $\mathcal{E}_y$ の検出感度 $-\sin 3\beta$ をプロットした。

4.3 光カー効果の影響

テラヘルツ波が強くなると、ポッケルス効果だけでなく光カー効果の信号も混ざってくるようになる。閃亜鉛鉱型結晶の場合、結晶の軸に沿う abc 座標系で見て電気光学カー効果による誘電率テンソルの変化分は

$$\delta\tilde{\epsilon} = 3\chi_{\mathrm{i}}^{(3)} \begin{pmatrix} \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_a^2 & 2\mathcal{E}_a\mathcal{E}_b & 2\mathcal{E}_a\mathcal{E}_c \\ 2\mathcal{E}_b\mathcal{E}_a & \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_b^2 & 2\mathcal{E}_b\mathcal{E}_c \\ 2\mathcal{E}_c\mathcal{E}_a & 2\mathcal{E}_z\mathcal{E}_b & \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_c^2 \end{pmatrix} + 3\chi_{\mathrm{a}}^{(3)} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_a^2 & 0 & 0 \\ 0 & \mathcal{E}_b^2 & 0 \\ 0 & 0 & \mathcal{E}_c^2 \end{pmatrix} \tag{138}$$

と与えられる（付録 A.2 参照）。ただし $\chi_{\mathrm{i}}^{(3)}$ は三次の非線形感受率のうち等方的な部分、$\chi_{\mathrm{a}}^{(3)}$ は異方的な部分である。右辺第一項の行列部分は、3×3 単位行列 I_3 を用いて $\mathcal{E}^2 I_3 + 2\boldsymbol{\mathcal{E}}\boldsymbol{\mathcal{E}}^{\mathrm{T}}$ と書き直しておくと座標変換しやすい。4.1 節で定義した XYZ 座標系に移ると

$$\begin{aligned} \delta\epsilon' = 3\chi_{\mathrm{i}}^{(3)} &\begin{pmatrix} \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_X^2 & 2\mathcal{E}_X\mathcal{E}_Y & 2\mathcal{E}_X\mathcal{E}_Z \\ 2\mathcal{E}_Y\mathcal{E}_X & \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_Y^2 & 2\mathcal{E}_Y\mathcal{E}_Z \\ 2\mathcal{E}_Z\mathcal{E}_X & 2\mathcal{E}_Z\mathcal{E}_Y & \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_Z^2 \end{pmatrix} \\ + 3\chi_{\mathrm{a}}^{(3)} &\begin{pmatrix} (\mathcal{E}_X^2 + \mathcal{E}_Z^2)/2 & 0 & \mathcal{E}_X\mathcal{E}_Z \\ 0 & \mathcal{E}_Y^2 & 0 \\ \mathcal{E}_X\mathcal{E}_Z & 0 & (\mathcal{E}_X^2 + \mathcal{E}_Z^2)/2 \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{139}$$

となる。テラヘルツ電場の性質として $\mathcal{E}_Z = 0$ が成り立つことから、今回も左上の 2×2 部分を取り出して

$$\delta\epsilon' = 3\chi_{\mathrm{i}}^{(3)} \begin{pmatrix} \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_X^2 & 2\mathcal{E}_X\mathcal{E}_Y \\ 2\mathcal{E}_X\mathcal{E}_Y & \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_Y^2 \end{pmatrix} + \frac{3}{2}\chi_{\mathrm{a}}^{(3)} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_X^2 & 0 \\ 0 & 2\mathcal{E}_Y^2 \end{pmatrix} \tag{140}$$

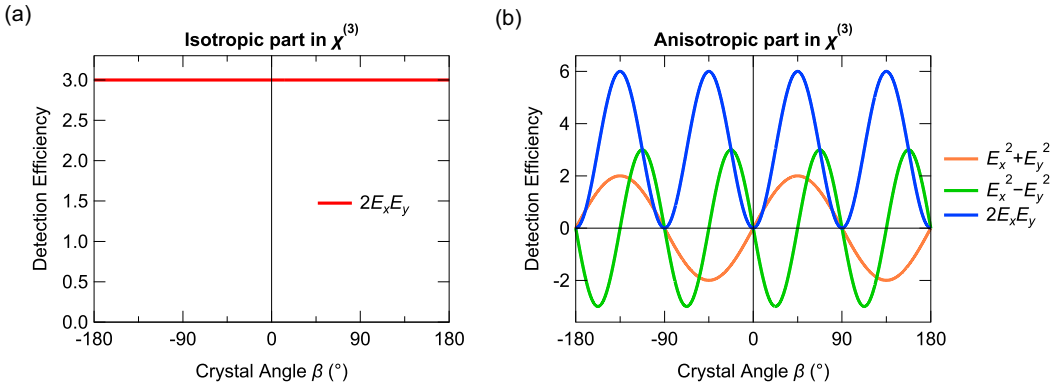

図 9　(a) 等方的な三次の非線形感受率 $\chi_{\rm i}^{(3)}$ による光カー効果の信号。(b) 異方的な三次の非線形感受率 $\chi_{\rm a}^{(3)}$ による光カー効果の信号。

を考えれば十分である。xy 座標系に移ると

$$\delta\epsilon = 3\chi_{\rm i}^{(3)} \begin{pmatrix} \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_x^2 & 2\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y \\ 2\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y & \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}_y^2 \end{pmatrix} + \frac{3}{2}\chi_{\rm a}^{(3)} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_X^2\cos^2\beta + 2\mathcal{E}_Y^2\sin^2\beta & -(\mathcal{E}_X^2 - 2\mathcal{E}_Y^2)\cos\beta\sin\beta \\ -(\mathcal{E}_X^2 - 2\mathcal{E}_Y^2)\cos\beta\sin\beta & \mathcal{E}_X^2\sin^2\beta + 2\mathcal{E}_Y^2\cos^2\beta \end{pmatrix} \tag{141}$$

となる（式の簡素化のため、ここでは $\mathcal{E}_{x,y}$ と $\mathcal{E}_{X,Y}$ を混在させた）。ここから電気光学カー効果によるバランス信号の変化分

$$\frac{\delta(I_x - I_y)}{(I_x + I_y)_0} = \frac{\omega L}{nc}\left\{6\chi_{\rm i}^{(3)}\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y + \frac{3}{16}\chi_{\rm a}^{(3)}\left[2(\mathcal{E}_x^2 + \mathcal{E}_y^2)\sin 2\beta - 3(\mathcal{E}_x^2 - \mathcal{E}_y^2)\sin 4\beta + 12\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y\sin^2 2\beta\right]\right\} \tag{142}$$

が求まる（ここでは電場を全て $\mathcal{E}_{x,y}$ で表した）。

電場 $\mathcal{E}_{x,y}$ が時間変化する場合、$\mathcal{E}_x^2$ 等に含まれる二倍の周波数成分を検出できるほどの時間分解能はないことがある。これはゲート光のパルス幅による制限だけでなく、高周波成分に対して位相整合条件を満たしにくいという事情にもよっている。このため、(142) 式中の $\mathcal{E}_x^2$ 等はある程度の時間幅で平均したものと読み替えた方がよい。一周期以上の幅で平均された場合、信号はほぼ光の強度をなぞって変化する。このような状況は電気光学カー効果ではなく光カー効果と呼ばれる。

三次の非線形感受率のうち、等方的な成分 $\chi_{\rm i}^{(3)}$ に由来する光カー効果の信号を図 9(a) に描いた。この場合は $2\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y$ が結晶の回転角 β によらずに検出される。一方、図 9(b) は異方的な三次の非線形感受率 $\chi_{\rm a}^{(3)}$ に由来する光カー効果の信号をプロットしている。こちらは $\mathcal{E}_x^2 + \mathcal{E}_y^2$ が $2\sin 2\beta$、$\mathcal{E}_x^2 - \mathcal{E}_y^2$ が $-3\sin 4\beta$、$2\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y$ が $6\sin^2 2\beta$ という比率で混在する。β を 360° 回したときにポッケルス効果は 3 つの極大を示すが（図 8(a)）、光カー効果は偶数回の極大を示すのが特徴である。

(0001) 面の GaSe の場合、三次の非線形分極は c 成分を持たないため再び ab 面内のみ考えればよい。光カー効果による誘電率テンソルの変化分は、ab 座標系で見て

$$\delta\tilde{\epsilon} = 3\chi^{(3)} \begin{pmatrix} 3\mathcal{E}_a^2 + \mathcal{E}_b^2 & 2\mathcal{E}_a\mathcal{E}_b \\ 2\mathcal{E}_a\mathcal{E}_b & \mathcal{E}_a^2 + 3\mathcal{E}_b^2 \end{pmatrix} \tag{143}$$

と与えられる（付録 A.2 参照）。これは (140) 式で $\chi_{\rm i}^{(3)} \to \chi^{(3)}$、$\chi_{\rm a}^{(3)} \to 0$、$\mathcal{E}_{X,Y} \to \mathcal{E}_{a,b}$ と置き換えたものに等しい。よってその後の計算を同じように辿ることができ、GaSe では図 9(a) に示したような等方的な信号しか現れないことが分かる。

付録 A　電気光学効果

A.1　ポッケルス効果

閃亜鉛鉱型結晶（点群 $\bar{4}3m = T_d$）の結晶軸に沿って abc 座標系を取り、二次の非線形分極を書き下すと

$$\tilde{\mathbf{P}}^{(2)}(\omega_1+\omega_2) = 4\epsilon_0 d_{36} \begin{pmatrix} E_b(\omega_1)E_c(\omega_2)+E_c(\omega_1)E_b(\omega_2) \\ E_c(\omega_1)E_a(\omega_2)+E_a(\omega_1)E_c(\omega_2) \\ E_a(\omega_1)E_b(\omega_2)+E_b(\omega_1)E_a(\omega_2) \end{pmatrix} \tag{144}$$

となる [2]。$\omega_1 \to 0$ の極限を取って $\tilde{\mathbf{E}}(\omega_1) \to \tilde{\boldsymbol{\mathcal{E}}}$ と置き、光電場 $\tilde{\mathbf{E}}(\omega_2)$ に対する線形分極 $\tilde{\mathbf{P}}^{(2)}(\omega_2) = \epsilon_0 \delta\tilde{\epsilon}\ \tilde{\mathbf{E}}(\omega_2)$ の形に書き直すと、誘電率テンソルの変化分

$$\delta\tilde{\epsilon} = 4d_{36} \begin{pmatrix} 0 & \mathcal{E}_c & \mathcal{E}_b \\ \mathcal{E}_c & 0 & \mathcal{E}_a \\ \mathcal{E}_b & \mathcal{E}_a & 0 \end{pmatrix} \tag{145}$$

が得られる。このように電場に比例する複屈折をポッケルス効果と呼ぶ。本文中の (116) 式は (145) 式に平衡状態での誘電率 n^2 を加算したものである。

GaSe（点群 $\bar{6}m2 = D_{3h}$）の場合、二次の非線形分極は

$$\tilde{\mathbf{P}}^{(2)}(\omega_1+\omega_2) = 4\epsilon_0 d_{22} \begin{pmatrix} -E_a(\omega_1)E_b(\omega_2)-E_b(\omega_1)E_a(\omega_2) \\ -E_a(\omega_1)E_a(\omega_2)+E_b(\omega_1)E_b(\omega_2) \\ 0 \end{pmatrix} \tag{146}$$

と書ける [2]。これは電場に c 成分があっても正しい。上と同様に光電場 $\tilde{\mathbf{E}}(\omega_2)$ が感じる誘電率テンソルの変化分を求めると

$$\delta\tilde{\epsilon} = 4d_{22} \begin{pmatrix} -\mathcal{E}_b & -\mathcal{E}_a & 0 \\ -\mathcal{E}_a & \mathcal{E}_b & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{147}$$

が得られる。(134) 式ではこの結果を使った。

A.2　電気光学カー効果

三次の非線形分極は、一般に

$$P_i^{(3)}(\omega_1+\omega_2+\omega_3) = \epsilon_0 D \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_1,\omega_2,\omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) \tag{148}$$

と与えられる [2]。ただし D は縮退因子で、$(\omega_1,\omega_2,\omega_3)$ の置換の個数を表す。具体的には、$\omega_{1,2,3}$ が全て等しい場合は $D=1$、1 つだけ異なる場合は $D=3$、全て異なる場合は $D=6$ となる。

閃亜鉛鉱型結晶では、$\chi_{ijkl}^{(3)}$ は 4 つの自由度を持ち

$$\chi_{aaaa}^{(3)} = \chi_{bbbb}^{(3)} = \chi_{cccc}^{(3)} \tag{149}$$

$$\chi_{aabb}^{(3)} = \chi_{bbaa}^{(3)} = \chi_{bbcc}^{(3)} = \chi_{ccbb}^{(3)} = \chi_{ccaa}^{(3)} = \chi_{aacc}^{(3)} \tag{150}$$

$$\chi_{abab}^{(3)} = \chi_{baba}^{(3)} = \chi_{bcbc}^{(3)} = \chi_{cbcb}^{(3)} = \chi_{caca}^{(3)} = \chi_{acac}^{(3)} \tag{151}$$

$$\chi_{abba}^{(3)} = \chi_{baab}^{(3)} = \chi_{bccb}^{(3)} = \chi_{cbbc}^{(3)} = \chi_{caac}^{(3)} = \chi_{acca}^{(3)} \tag{152}$$

が独立である [2]。分散を無視すると、intrinsic permutation symmetry により後半の 3 つは等しくなる。そこで、

$$\chi^{(3)}_{aaaa} = \chi^{(3)}_{\mathrm{a}} + 3\chi^{(3)}_{\mathrm{i}} \tag{153}$$

$$\chi^{(3)}_{aabb} = \chi^{(3)}_{abab} = \chi^{(3)}_{abba} = \chi^{(3)}_{\mathrm{i}} \tag{154}$$

と置き、2 つの自由度 $\chi^{(3)}_{\mathrm{i}}$ と $\chi^{(3)}_{\mathrm{a}}$ によって表す。この結果、非線形分極は

$$\begin{aligned} P^{(3)}_a(\omega_1+\omega_2+\omega_3) = {} & D\epsilon_0\chi^{(3)}_{\mathrm{a}}E_a(\omega_1)E_a(\omega_2)E_a(\omega_3) + D\epsilon_0\chi^{(3)}_{\mathrm{i}}\,[3E_a(\omega_1)E_a(\omega_2)E_a(\omega_3) \\ & +E_a(\omega_1)E_b(\omega_2)E_b(\omega_3) + E_b(\omega_1)E_a(\omega_2)E_b(\omega_3) + E_b(\omega_1)E_b(\omega_2)E_a(\omega_3) \\ & +E_a(\omega_1)E_c(\omega_2)E_c(\omega_3) + E_c(\omega_1)E_a(\omega_2)E_c(\omega_3) + E_c(\omega_1)E_c(\omega_2)E_a(\omega_3)] \end{aligned} \tag{155}$$

と与えられる。$P^{(3)}_b$ 及び $P^{(3)}_c$ は abc を巡回置換すれば得られる。$\omega_1 = \omega_2 = 0$ と置き、$\tilde{\mathbf{E}}(\omega_3)$ が感じる誘電率の変化分を求めると (138) 式になる。

GaSe の場合、$\chi^{(3)}_{ijkl}$ は 10 個の独立な成分を持つ [2]。しかし、入射電場が ab 平面内に偏光している場合には 3 つの自由度だけが残る。すなわち

$$\chi^{(3)}_{aabb} = \chi^{(3)}_{bbaa} \tag{156}$$

$$\chi^{(3)}_{abba} = \chi^{(3)}_{baab} \tag{157}$$

$$\chi^{(3)}_{abab} = \chi^{(3)}_{baba} \tag{158}$$

の 3 個が独立であり、これ以外には

$$\chi^{(3)}_{aaaa} = \chi^{(3)}_{bbbb} = \chi^{(3)}_{aabb} + \chi^{(3)}_{abba} + \chi^{(3)}_{abab} \tag{159}$$

が値を持つ[*14]。分散を無視すると、intrinsic permutation symmetry により

$$\chi^{(3)}_{aabb} = \chi^{(3)}_{abba} = \chi^{(3)}_{abab} \tag{160}$$

が成り立つから、これを $\chi^{(3)}$ として

$$\begin{aligned} P^{(3)}_a(\omega_1+\omega_2+\omega_3) = {} & D\epsilon_0\chi^{(3)}\,[3E_a(\omega_1)E_a(\omega_2)E_a(\omega_3) + E_a(\omega_1)E_b(\omega_2)E_b(\omega_3) \\ & +E_b(\omega_1)E_b(\omega_2)E_a(\omega_3) + E_b(\omega_1)E_a(\omega_2)E_b(\omega_3)] \end{aligned} \tag{161}$$

が得られる。$P^{(3)}_b$ は添え字の a と b を入れ替えれば求まる。$\omega_1 = \omega_2 = 0$ と置き、$\tilde{\mathbf{E}}(\omega_3)$ が感じる誘電率の変化分を求めると (143) 式になる。

参考文献

[1] `https://www.thorlabs.co.jp/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=14199`.

[2] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 4th ed. (Academic Press, Cambridge, 2020).

[*14] これは等方的な媒質の場合と等価である。