

## BaTiO<sub>3</sub> : Ce 単結晶における 2 光波結合の研究

多 田 紘 二\*・西 川 裕 章\*\*

### Coupling of two coherent optical beams in BaTiO<sub>3</sub> : Ce single crystal

Koji Tada and Hiroaki Nishikawa

Steady - state beam coupling is used to characterize three single crystals of BaTiO<sub>3</sub> including Ce dopant. We show experimentally the dependence of photorefractive property on deep traps as well as assumed shallow traps included in the crystals.

#### 1. 緒言

非線型光学効果を利用したオプトエレクトロニクスデバイスでは光通信や光情報処理,さらにはレーザ計測において重要な役割を果たしている.

非線型光学効果の一つとしてフォトリフラクティブ効果があるが化合物半導体や誘電体結晶中の光生成電荷による空間電界は媒質の電気光学効果を通じて,屈折率変化をもたらすその結果伝搬する光波間の結合が生じる.したがってフォトリフラクティブ材料では光生成電荷の消滅や捕獲等のバンド輸送の問題がその特性を支配する.

BaTiO<sub>3</sub>単結晶はフォトリフラクティブ効果を有する代表的な材料であるが,特性の向上を目的にCeなどの微量の他元素を添加する試みが盛んであり効果も確認されている.<sup>(1),(2)</sup> しかしながらCeが添加されたBaTiO<sub>3</sub>単結晶についての物性的観点からの評価研究は現在ほとんどなされていないという現状である.

本論文ではCe元素を含むBaTiO<sub>3</sub>単結晶(BaTiO<sub>3</sub>:Ce)についてレーザ光の2光波結合による評価解析を行った結果,電子物性に関する重要と思われる知見が得られたので報告する.

#### 2. 理論

##### 2-1. 2 光波結合

フォトリフラクティブ媒質中での2光波の電界を  $E_1, E_2$  とすると,平面波近似では

$$E_j = A_j \exp\{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\}, \quad j = 1, 2 \quad (1)$$

---

\* 電気工学科    \*\* 電気工学専攻大学院生

ここで  $A_1, A_2$  は光波の振幅,  $\omega$  は角周波数,  $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2$  は波数ベクトルである. いま座標系を図1のようにとり, 2光波はいずれも入射面に垂直(s 偏光) とすると, 波動方程式に  $E = E_1 + E_2$  を代入し, 空間座標に関する振幅の2次微係数が1次微係数に比べ充分小さいとする近似により以下の光波結合方程式が得られる.<sup>(3)</sup>

$$dA_1/dz = -(1/2 I_0) \Gamma |A_2|^2 A_1 - (\alpha/2) A_1 \quad (2)$$

$$dA_2/dz = (1/2 I_0) \Gamma^* |A_1|^2 A_2 - (\alpha/2) A_2 \quad (3)$$

ここで,  $I_0 = I_1 + I_2 = |A_1|^2 + |A_2|^2$ ,  $\alpha$  は光吸収係数である.  $\Gamma$  は結合係数であり  $\Gamma = \gamma + 2i\beta$  と表すと,

$$\gamma = \pi \mathbf{p}_1 \cdot \varepsilon_1 \mathbf{p}_2 / (n_0 \varepsilon_0 \lambda \cos \theta) \quad (4)$$

ここで,  $\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2$  は各光波の偏光方向の単位ベクトル,  $n_0$  は媒質の平均的屈折率,  $\varepsilon_0$  は真空誘電率である.

$\varepsilon_1$  は誘電率テンソルでありその要素は次で表されるものである.

$$(\varepsilon)_{ij} e^{i\phi} A_1^* A_2 / I_0 = -\varepsilon_0 n_i^2 n_j^2 r_{ijk} E_{1k} \quad (5)$$

ここで,  $\phi$  は光強度分布と屈折率分布との位相差,  $n_i, n_j$  は結晶主軸の屈折率である.  $E_1$  は空間電界の振幅成分である.

BaTiO<sub>3</sub> 単結晶は, 4mm 点群に属し, また光波が s 偏光の場合,

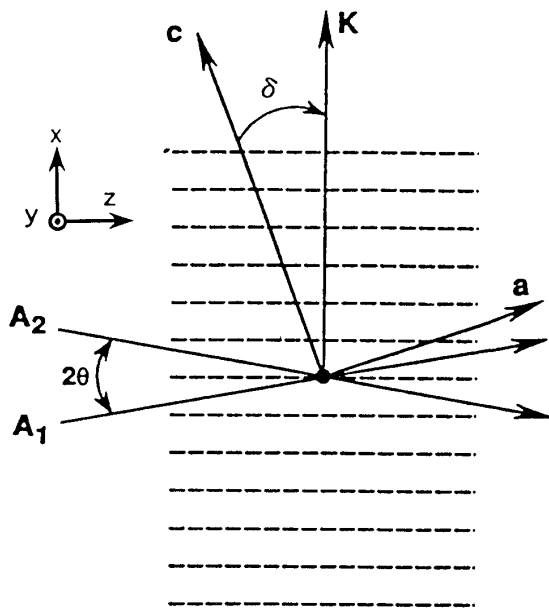


図1 フォトリフラクティブ結晶中の結晶主軸, 屈折格子と座標系

$$\gamma = -2\pi n_0^3 r_{13} E^s \cos \delta / (\lambda \cos \theta), \quad E^s = E / (I_1 / I_0) \quad (6)$$

先の結合方程式から結晶出口での複素振幅  $A_1, A_2$  を持つ光波の強度  $I_1', I_2'$  が求められる. すなわち

$$I_1' = I_1(z) = I_1(0) (1 + m^{-1}) e^{-\alpha z} / (1 + m^{-1} e^{\gamma z}) \quad (7)$$

$$I_2' = I_2(z) = I_2(0) (1 + m) e^{-\alpha z} / (1 + m e^{-\gamma z}) \quad (8)$$

ここで  $m = I_1(0) / I_2(0)$ ,  $\alpha$  は媒質の吸収係数である.

## 2-2. フォトリフラクティブ効果のバンド輸送モデル

フォトリフラクティブ効果に関しては, キャリヤが電子(またはホール)の場合, 深い準位のドナー(またはアクセプター)および浅い準位のアクセプタ(またはドナー)を含むバンド構造で記述される.<sup>(2)</sup> また同時に存在する浅いドナー(またはアクセ

ブタ)によっても電子物性は影響を受ける。以下においてはキャリアが電子であると仮定する。(ホールの場合でも同等の結論が得られる。)結晶中の深いドナー濃度を  $N_d$ , その内イオン化しているものを  $N$  とする。浅いアクセプタ濃度を  $N_a$  とし、アクセプタは全てホールを放出しイオン化しているとする。光照射部ではドナーから解放される電子は拡散または電界によって未照射部へ移動し深いドナーにより捕獲される。このため照射部では正に、未照射部では負に帯電し、局部電界が形成され媒質の持つ電気光学効果によって屈折率が変化する。

2 光波照射の場合、光強度は周期的に変化し、発生電界や屈折率も周期関数で与えられる。したがって電荷のレート方程式や輸送に関する式はフーリエ成分間の等式となり解析解が得られる。光強度の干渉パターンを

$I(r) = I_0 + \text{Re}\{I_1 \exp(-K \cdot r)\}$  (ここで  $I_0 = |E_1|^2 + |E_2|^2$ ,  $I_1 = 2 E_1 \cdot E_2^*$ ) とすると、電界  $E$  の定常解は次式で与えられる。

$$E(r) = E_0 + \text{Re}\{E_1 \exp(-i K \cdot r)\} \quad (9)$$

$$E_1 = (i K k_B T / q - K \cdot \mu E_0 / K < \mu >) (I_1 / I_0) / \{1 + K^2 / k_D^2 + i q K \cdot \mu E_0 (k_B T k_D^2 < \mu >)\} \quad (10)$$

ここで  $k_D^2 = q^2 N_a (N_d - N_a) / (N_d < \epsilon > k_B T)$ ,  $< \epsilon > = K \cdot \epsilon K / K^2$ ,  $< \mu > = K \cdot \mu K / K^2$  である。この結果より、2 光波結合において結合係数  $\gamma$  は結晶軸方向、入射角、偏光方向、入射光強度などの実験条件とともにフォトリフラクティブ結晶の電子物性に依存することがわかる。

図 1 に示す座標系において格子波数ベクトルと結晶主軸である  $c$  軸とのなす角を  $\delta$  とすると、 $\delta = 90 \text{ deg.}$  のとき  $\gamma = 0$  となり、光強度に関する結合方程式 (8) から、吸収係数  $\alpha$  ( $I_1, I_2$  on) が求められる。

### 3. 実験方法

図 2 に実験に使用した光学系の配置を示す。入射光源は波長 514 nm、最大出力 50

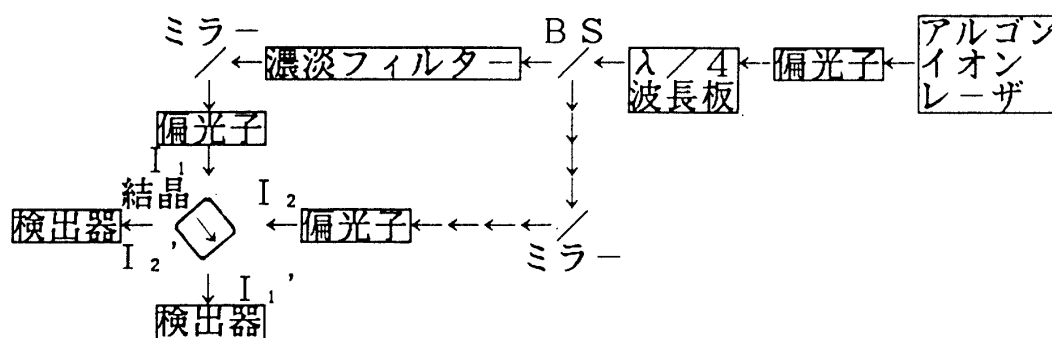


図2 実験配置図

mWのArイオンレーザである。レーザ光は偏光子および $\lambda/4$ 波長板でほぼ円偏波としビームスプリッター (BS) で2光波に分け一方の光波の強度を濃淡 フィルターで調節する。各光波は偏光子でs波に変換され、結晶のc軸方向に平行に入射角 $\theta$ で交差させ結晶中へ導入する。結晶を通過した各光波はPINフォトダイオードで検出する。

BS通過後の各光波の光路長差はレーザの可干渉範囲である約5 cm以下とした。

使用した3種類の結晶はいずれBaTiO<sub>3</sub>:Ceである。結晶は異なったロットでありCe濃度やその他不純物、欠陥については不明である。大きさは各々結晶Aは4 x 5 x 5 (mm<sup>3</sup>)、結晶Bは5.5 x 6.5 x 6.5 (mm<sup>3</sup>) 結晶Cは5 x 5 x 1 (mm<sup>3</sup>) である。

光吸収係数の測定は $\theta = 20\text{deg.}$ の場合について一方の透過光強度を変化させて求めた。

#### 4. 実験結果

図3 には結晶Aについて2光波結合に関する実験結果を示す。入射光の交差角 ( $2\theta$ ) を20 deg. とし、 $I_1(0)$  を1 mWとした場合の横軸に示す各 $I_2(0)$ に対する出射光強度 $I_2'$ の測定結果である。結晶BおよびCについても同様な結果、すなわち $I_2'$ が $I_2(0)$ に対しほぼ直線的に増大する結果が得られた。 $I_1'$ に関しては $I_2(0)$ の増加とともにやや減少傾向にある。

$I_1'$ や $I_2'$ は媒質中の光波の伝搬距離、結合係数および吸収係数によって決まる。

次式で表される $\gamma_0$ によって結合係数の評価が可能である。

$$\begin{aligned}\gamma_0 &= I_2' (I_1 \text{ 光照射あり}) / I_2' (I_1 \text{ 光照射なし}) \\ &= (1 + m) \exp(-\alpha_{\text{induced}} \cdot z) / \{1 + m \exp(-\gamma z)\} \quad (11)\end{aligned}$$

$\alpha_{\text{induced}}$ は光 $I_1$ および光 $I_2$  (1 mW) がある場合の吸収係数と光 $I_1$  のみの場合の吸収係数との差である。実際には後述のように $\alpha_{\text{induced}}$ は無視できないが、無視できる近似においては $m$ が充分大なとき、 $(1/z) \ln \gamma_0$ は結合係数 $\gamma$  そのものとなる。

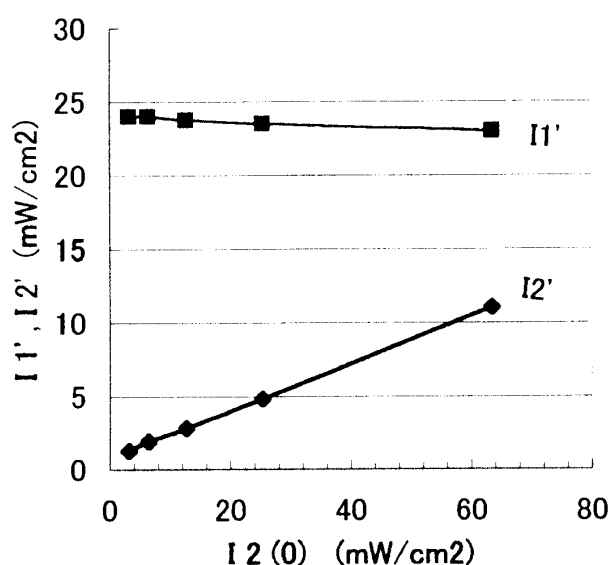


図3 結晶Aの2光波結合

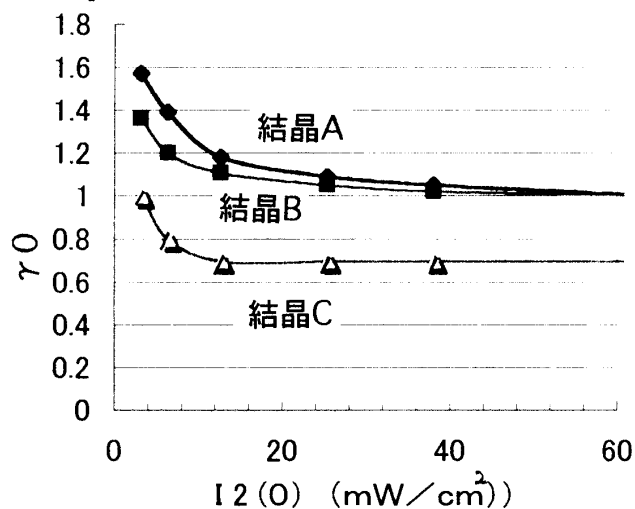


図4  $\gamma_0$ と $I_2(0)$ の関係

$\theta = 20\text{deg.}$ ,  $\delta = 0\text{deg.}$ ,  $I_1(0) = 1\text{mW}$

図 4 に各結晶について  $\gamma_0$  と  $I_2(0)$  との関係を示した. 同図は格子波数ベクトル  $K$  と結晶  $c$  軸との角度 ( $\delta$ ) は 0 deg. である. 結晶 A, B については  $\gamma_0$  は  $m$  (i.e.  $I_1(0)/I_2(0)$ ) の増大とともに増大している.

他方, 式 (8) より  $I_1 = 1$  mW, および各々の  $I_2$  の加わった場合の吸収係数  $\alpha(I_1, I_2; \text{on}, \delta = 90 \text{ deg.})$  が求められる. この結果を図 5 に示す.

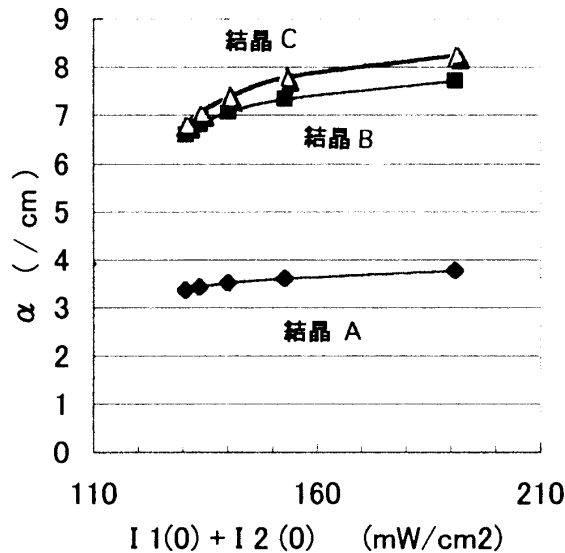


図5 吸収係数  $\alpha(I_1, I_2; \text{on}, \delta = 90 \text{ deg.})$   
横軸は全光強度 ( $I_1(0) + I_2(0)$ )

表 1

各結晶の  $\gamma$  値 ( $1/\text{cm}$ )

光強度 $I_2$ (mW/cm <sup>2</sup> )	光強度 $I_1 + I_2$ (mW/cm <sup>2</sup> )	結晶 A	結晶 B	結晶 C
4.19	131.6	1.15	1.04	0.95
6.35	133.8	0.84	0.91	0.95
12.7	140.1	0.67	0.86	1.19
25.4	152.8	0.57	1.03	1.35
63.5	191.0	0.73	1.85	2.31

$\theta = 20 \text{ deg.}, \delta = 0 \text{ deg.}$

2 光波はいずれも s 偏光

結晶によって吸収係数は異なっており, 結晶内の不純物や欠陥が各々違うことがわかる. これらの吸収係数の値  $\alpha(I_1, I_2; \text{on}, \delta = 90 \text{ deg.})$  を用いて  $\delta = 0 \text{ deg.}$  の場合の  $I_2'$  の測定値から各  $m$  の値について結合係数  $\gamma$  を求めた. 結果を表 1 に示す.

表 2 には (10) 式より導かれた  $\text{Na}(\text{Nd-Na})/\text{Nd}$  の値を各結晶について示す. 表 1 からわかるように結晶 A, B については光強度の増加とともに  $\gamma$  は減少し,  $I_1 + I_2$  が 191.0 mW/cm<sup>2</sup> で増加している. これに対し 結晶 C では増加する一方である.

表 2

$\text{Na}(\text{Nd-Na})/\text{Nd}$  の値 ( $\times 10^{-3}/m$ )

光強度 $I_2$ (mW/cm <sup>2</sup> )	光強度 $I_1 + I_2$ (mW/cm <sup>2</sup> )	結晶 A	結晶 B	結晶 C
4.19	131.6	5.46	4.69	4.12
6.35	133.8	3.47	3.89	4.12
12.7	140.1	2.59	3.59	5.76
25.4	152.8	2.13	4.62	7.09
63.5	191.0	2.89	13.2	24.7

$\theta = 20 \text{ deg.}, \delta = 0 \text{ deg.}$

2 光波はいずれも s 偏光

$\gamma$  と対応して  $Na(Nd-Na)/Nd$  の値 ( $N_d \gg N_a$  の場合, 暗中でのイオン化した  $N_d$  濃度に対応する.) が変動していることがわかる.

## 5. 検討

フォトリフラクティブ媒質中の 2 光波結合は光生成電荷の空間的分布による電界と媒質の電気光学効果によって生じる屈折格子が重要な役割を果たす.

光吸収係数は 浅い不純物準位を含む媒質では  $\alpha = s_D N_{DA} + (s_T - s_D) M_0$  と表されている.(4) ここで  $s_D$  は深い準位の光励起断面積,  $N_{DA} = N_D - N_A$ ,  $s_T$  は浅い準位の光励起断面積,  $M_0$  は電子(またはホール)が占有している浅い準位濃度である.

第 1 項は暗中の熱平衡状態での深い準位からの電子(またはホール)の励起による吸収であり第 2 項は光によって誘起される吸収係数の変化である. 光吸収係数が光強度とともに増大するのは  $s_T > s_D$  であることが示唆される.

表 1 および表 2 のいずれの結晶においても, 或る範囲の光強度で  $\gamma$  や対応する  $Na(Nd - Na)/Nd$  の値が変動するのは, 深い準位や 浅い準位の占有濃度が光強度によって変化することが考えられる. 今後, 浅い準位を考慮した電荷のレート方程式のモデル解析が必要である.

2 光波結合効果の光増幅への応用では, 結合係数  $\gamma$  とともに 光吸収係数  $\alpha$  の値が問題となる. 式 (8) において  $m \gg 1$  のとき  $I_2(z)/I_2(0)$  は  $e^{(\gamma - \alpha)z}$  で表されるが  $\gamma > \alpha$  が増幅の条件となる. 表 1 および 図 5 から結晶 A は  $\alpha$  が小であるため, 特に  $m$  値が大なる範囲で  $\gamma$  と  $\alpha$  の差が小さくなっている. 本論文では  $s$  偏光が主であったが, 増幅作用の点では,  $\gamma$  値の増大が期待される  $p$  偏光を検討する必要がある.

## 6. 結言

BaTiO<sub>3</sub>:Ce 単結晶についてフォトリフラクティブ効果の電子物性の基礎的評価を行った. 特に基本的特性が得られる, 2 光波結合の理論的, 実験的研究を進めた結果, 結合係数とともに光吸収係数が光照射強度に依存し, 実用的な応用において考慮すべき問題であることがわかった. 結晶中の Ce 元素添加濃度や不純物によって深い捕獲準位とともに浅い捕獲準位は光強度依存性に関連性があり, 結晶への元素添加や不純物混入に際し充分配慮が必要であると思われる.

## 参考文献

- (1) T. Y. Chang and R. W. Hellwarth, Optics Lett. **10**, 408 (1985)
- (2) 多田, 岡島, 福井工業大学研究紀要, 第27号, 37 (1997)
- (3) P. Yeh, "Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics" (John Wiley & Sons, New York, 1993)
- (4) P. Tayebati and D. Mahgerefteh, J. Opt. Soc. Am. B, **8**(5), 1053 (1991)

(平成10年12月 5 日受理)