

BaTiO₃:Ce の自己ポンプ法による位相共役波の発生

多 田 紘 二* ・ 岡 島 武 志*

Generation of the phase-conjugate optical wave by a self-pumped BaTiO₃:Ce single crystal

Koji TADA ・ Takeshi OKAJIMA

The phase-conjugate wave is generated by a self-pumped phase conjugator, using a single domain crystal of BaTiO₃:Ce for the wave length of 514 nm.

The optimization of phase-conjugate wave is analyzed through the coupling equations for four waves (i.e., 1. an incident wave, 2. a scattered wave by inhomogeneities in the crystal, 3. a wave scattered at different parts in the crystal, which is reflected at the crystal edges and happens to propagate along the same path, but directed just backward, of the incident wave, and 4. a diffracted phase-conjugate wave)

The requirements for the high reflectivity of the phase-conjugate wave and the effects of the photon-energy in connection with the crystal electronic-properties are discussed.

1. 緒 言

近年、非線型光学の分野は急速に進展が見られ、特に或る種の光学結晶において結晶中の光強度の分布により局所的な屈折率分布をもたらす、いわゆるフォトリフラクティブ効果に関する基礎および応用研究の重要性が増大している。

この独特の効果はレーザ光を利用する光共振器、増幅器、位相共役波鏡や光インタコネクション、実時間ホログラフィあるいは光コンピューティングにおけるニューラルネットワーク素子などへの応用が研究されている。

位相共役波とは入射光波に対する時間反転波とも呼ばれ、空間の任意の点で同じ波面を持つ逆方向に進行する光波のことであるがこの発生機構は上記のさまざまな応用に関し基本的に共通するものである。

フォトリフラクティブ効果の顕著な BaTiO₃ 単結晶は各種の励起法によって位相共役波が発生でき、これまで多くの報告例がある。さらに BaTiO₃ 単結晶に Fe、Co や Ce 元素の添加により特性改善の試みも行われている。(1),(2) 添加効果による位相共役波の発生に関して実験的な結果は示されているが、特に波長依存性と結晶の電子物性に関連した理論との比較検討は充分ではないように考えられる。

本論文では Ce を数十ppm添加した BaTiO₃ 単結晶において Arイオンレーザ(波長 514nm)および He-Neレーザ光(波長633nm)の励起光により自己ポンプ法によって発生さ

*電気工学科

せる場合の位相共役波の発生効率に関し実験的,理論的検討を行ったので報告する.

2. 位相共役波の発生

位相共役波の発生の機構を図1で示す. BaTiO₃などのフォトリフラクティブ効果を持つ単結晶に入射光および前進ポンプ光をある角度で結晶の1側面に照射する. 同時に前進ポンプ光と対向する後進ポンプ光を別の側面から入射する. 入射光と前進ポンプ光とが干渉して生じた光強度分布は結晶中に対応したフォトキャリアの電荷分布を形成する. 従って電界が発生し, 結晶の電気光学効果により屈折率分布が生じる. 屈折格子とも呼ばれる. 後進ポンプ光はこの屈折格子により回折し入射光とは逆方向に向かう. これが入射光に対する位相共役波である. この現象を4波混合といい, 一般的な位相共役波の発生原理である.

入射光波が平面波の場合, 電界を $A \cdot \exp\{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\}$ とすると, 位相共役波の電界は $A^* \cdot \exp\{i(\omega t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})\}$ である. A は複素振幅, A^* はその共役複素数, ω は光波の角速度, \mathbf{k} は波数ベクトル, \mathbf{r} は位置ベクトルである.

3. 自己ポンプ法

フォトリフラクティブ単結晶内での内部光および結晶内表面での反射光を利用して位相共役波を発生することが可能である.⁽³⁾ 自己ポンプ法という. 図2には単結晶の直角の角部を含む1部分を示す. 単結晶内部のP'点を通る入射光(4)は直行しP点で1部は散乱光(1)となる. 散乱光は結晶内部の欠陥や不均質性によって生ずるもので一般的には等方的に散乱する.

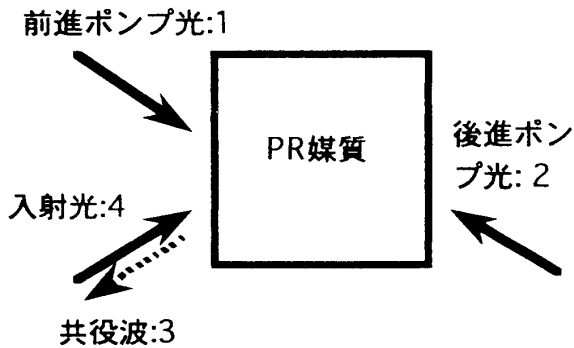


図1 4波混合機構

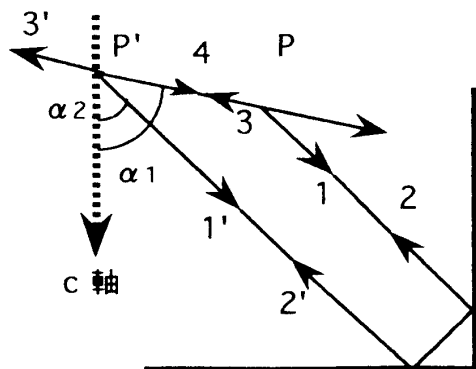


図2 自己ポンプ法による共役波発生

同様にP'点での散乱光の内, 1'で示す光線は結晶端で反射し光線2となりP点に至る. いま, 光線1と2が一致する場合図1における入射光が光線4に, 前進ポンプ光が光線1に, 後進ポンプ光が光線2に, 発生共役波が光線3に対応する. P'点においても同様であり光線3および3'は入射光の共役波となって反射される.

4. 実験方法

図3に光学系の配置を示す. 図中, L1, L2: 集光用レンズ, NDF: 濃淡フィルター, PBS: 偏光ビームスプリッター, PL: 偏光子, D: 光パワー検出器である. 結晶は0°-cut BaTiO₃:Ce単結晶で $a \times a \times c$ 方向に各辺は約5 mm, 6面共光学研磨されている. 図では $a \times c$ 面が紙面に水平となっている.

入射光源は Ar イオンレーザー、結晶入射端面でビーム径が約 1mm、光出力は 53 μ W ~ 1.5mW とした。偏向方向は p 波(入射面に平行)、s 波(同垂直)とした。実験では共役波の光強度の結晶直前の入射光強度に対する比率を反射率とした。

5. 実験結果

位相共役波の光ビームは入射後数十秒~数分たってから観測できる。常に位相共役波が発生するのではなく適切な内部反射光が形成されることが必要である。入射直線光と結晶端面となす角度が 60~80 度のとき明瞭に位相共役光と思われる反射光が見られた。透過光が結晶端面に対して約 75 度の場合について表 1 に各入射光強度に対する共役波の反射率を示す。反射率は入射光強度に対しては変化は小さく、偏向方向に大きく依存する。p 波(異常光)は s 波(常光)に比べ約三桁大きい。

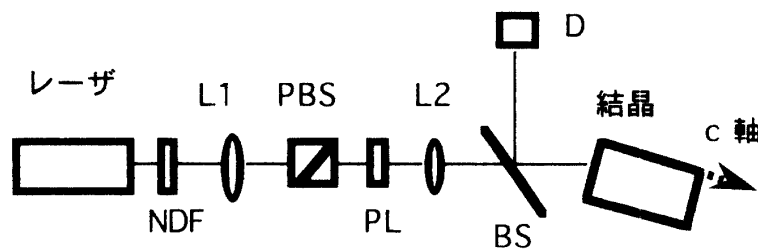


図3 光学系配置

表 1 位相共役波反射光強度測定結果

p 波	入射光(mW)	0.05	0.11	0.23	0.49	1.27	1.51
	反射率(%)	10.3	10.8	10.5	7.7	10.4	9.6
s 波	入射光(mW)	0.08	0.17	0.32	0.72	1.93	2.26
	反射率($\times 10^{-3}$ %)	2.8	9.3	9.8	6.5	5.5	5.3

* 波長:514nm, ビーム径:約1mm, フレネル反射(約17%)は未補正

6. 位相共役波の入射光偏光方向と入射角に関する理論解析および検討

図 2 に示す自己ポンプ法における位相共役波発生モデルにおいて P 点での 4 波混合の理論を適用する。⁽³⁾ 各光波は平面波で近似し、その電界が $E_j = A_j \exp(i \mathbf{k}_j \cdot \mathbf{x} - i \omega t) + c.c$ ($j=1 \sim 4$) であるとする。また結晶中で光の吸収は小さいこと、各光波はそれ自身とは相互作用しないこと、屈折率分布は定常であり、屈折格子は次式、 $\mathbf{k}_g = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_4 - \mathbf{k}_1$ に従う波数ベクトルとすると仮定する。さらに振幅 A_j は空間的变化が格子周期より小さいとすると、次式の結合方程式が得られる。

$$d A_1 / d z = \gamma \alpha A_4 / I_0, \quad d A_2^* / d z = \gamma \alpha A_3^* / I_0$$

$$dA_3/dz = -\gamma \alpha A_2/I_0, \quad dA_4^*/dz = -\gamma \alpha A_1^*/I_0 \quad (1)$$

$$\alpha = A_1 A_4^* + A_2^* A_3, \quad I_0 = I_1 + I_2 + I_3 + I_4 \quad (I_j = |A_j|^2)$$

ここで γ は結合係数である。フォトリフレクティブ単結晶では結合係数は電気光学係数 r_{ij} 、入射光(4) および前進ポンプ光(1) が結晶 c 軸となす角度 α_1 および α_2 、結晶内の電荷捕獲センタ濃度 N によって決まり次式で与えられる。(4)

$$\gamma = \omega E r_{\text{eff}} / \{2nc \cos(\alpha_1/2 - \alpha_2/2)\} \quad (2)$$

ここで、 E は捕獲電荷による電界で $E = k_B T k_g / \{q(1 + (k/k_0)^2)\}$ 、 $k_0 = (Nq^2 / (\epsilon_0 k_B T))^{1/2}$ 、 ω は角周波数、 $k_B T$ は熱エネルギー、 q は電荷素量、 $k_g = 2(n\omega/c) \sin\{(\alpha_1 - \alpha_2)/2\}$ は屈折格子の波数ベクトル k_g の大きさである。また $\epsilon \epsilon_0$ は k_g 方向の誘電率である。

BaTiO₃ 結晶のように点群 4mm に属するものは r_{eff} は次のように与えられる。すなわち常光線に対し、 $r_{\text{eff}} = n_0^4 r_{13} \sin\{(\alpha_1 + \alpha_2)/2\}$ 、異常光線に対しては $r_{\text{eff}} = [n_0^4 r_{13} \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 + 2n_e^2 n_0^2 r_{42} \cos^2\{(\alpha_1 + \alpha_2)/2\} + n_e^4 r_{33} \sin \alpha_1 \sin \alpha_2] \sin\{(\alpha_1 + \alpha_2)\}$ 共役波の発生においては、高い結合係数を持つことが必要条件である。特に、入射光の角度条件は結合係数に対して影響が大であると考えられるので(2)式を用いて結合係数の値を求めた。ただし、BaTiO₃ の場合、 $r_{42} = 820 \times 10^{-12}(\text{m/V})$ 、 $r_{13} = 8 \times 10^{-12}(\text{m/V})$ 、 $r_{33} = 23 \times 10^{-12}(\text{m/V})$ 、 $n_o = 2.41$ 、 $n_e = 2.36$ とし、 N を 2×10^{22} 個/ m^3 および 4×10^{22} 個/ m^3 とした。波長が 520nm の場合、異常光および常光について 結合係数(γ) と角度 α_1 および α_2 との関係を図 4 に示す。

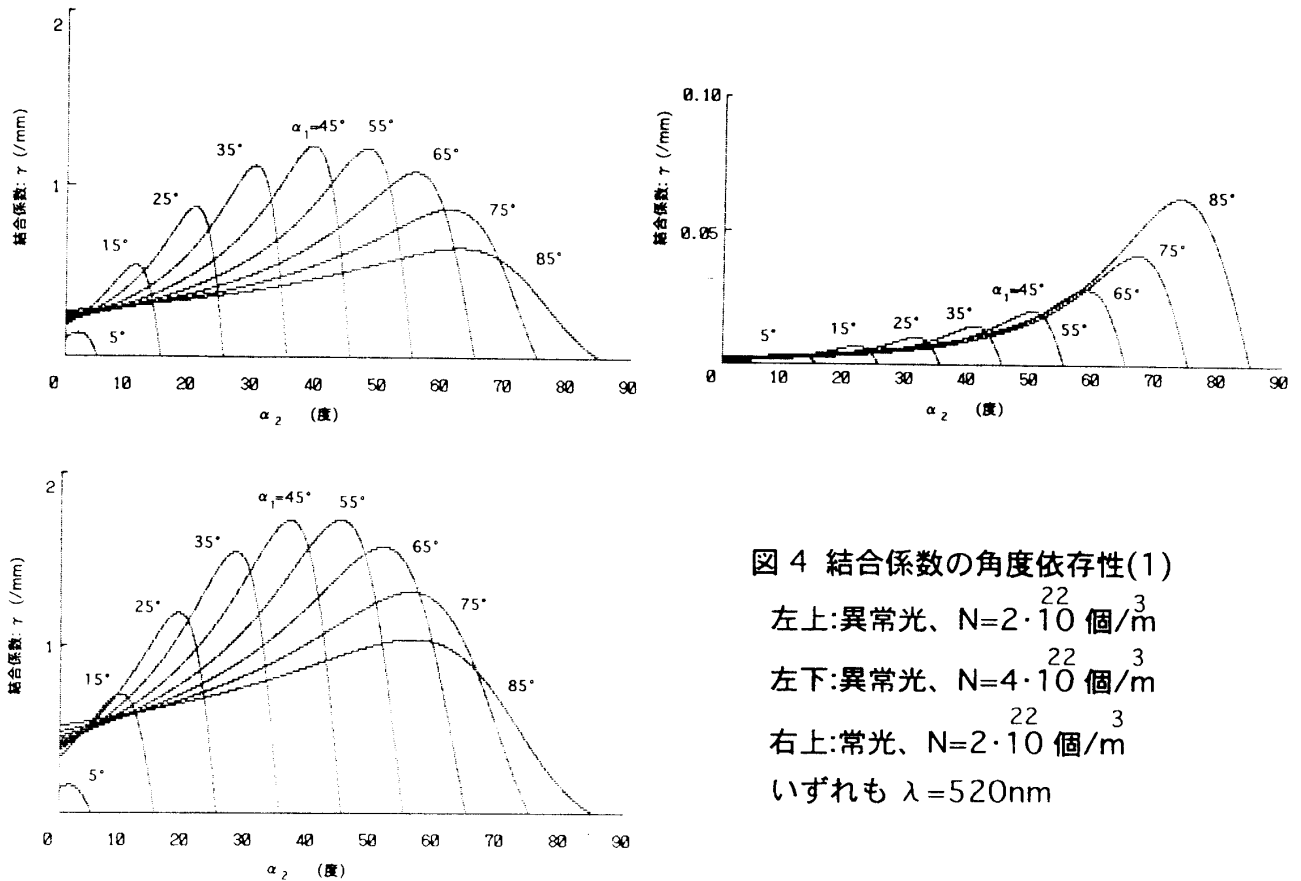


図 4 結合係数の角度依存性(1)

左上:異常光、 $N=2 \cdot 10^{22}$ 個/ m^3

左下:異常光、 $N=4 \cdot 10^{22}$ 個/ m^3

右上:常光、 $N=2 \cdot 10^{22}$ 個/ m^3

いずれも $\lambda = 520\text{nm}$

特長的なことは、異常光の場合、常光に比べ結合係数のピーク値は約30倍大であることである。これは電気光学係数の異方性によるものであり、共役波の反射光強度に与える影響は大きい。また異常光の結合係数は α_1 が45~55度、 α_2 が40~50度の範囲でピークがみられる。さらに電子捕獲準位に占有されている電荷濃度(N)が増大すると結合係数が大きくなることがわかる。図5には波長が633nmの場合について異常光および $N = 4 \times 10^{22}$ 個/m³に対する結合係数の変化を示した。633nmの場合520nmの同一条件に比べ若干小さくでる。

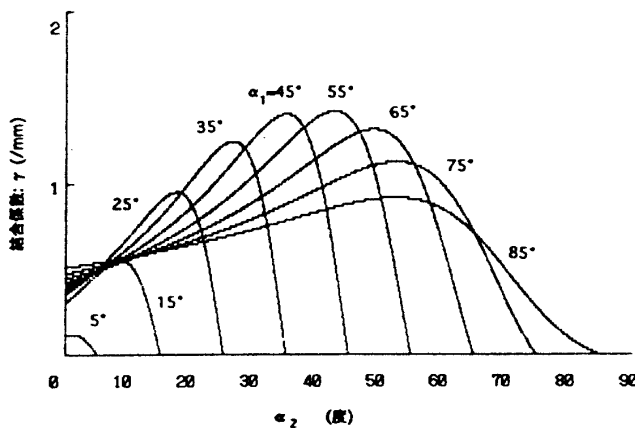


図5 結合係数の角度依存性(2)

異常光、 $N = 4 \cdot 10^{22}$ 個/m³、 $\lambda = 633$ nm

以上の解析結果は共役波発生に関する条件の一部にすぎないが実験結果で示された偏光依存性や入射角の最適範囲の存在などよく説明していることがわかる。波長依存性に関しては実験との対比は行っていないが光子エネルギー($h\nu$)による影響は大きく出ると考えられる。すなわち高い光子エネルギーは光生成キャリア濃度、捕獲電荷濃度を増大させNの値を実質的に大きくするためである。Ceの添加効果は捕獲準位に関連するものであり今後の検討課題である。今回の実験結果では波長

514nmの場合、p波の反射率の絶対値は約

10%となったが、フレネル反射率補正の効果や測定条件の改善など精度を上げた短波長および長波長領域での実験を今後継続して検討する必要がある。

7. 結言

BaTiO₃:Ce結晶を用い自己ポンプ法による位相共役波発生に関する実験および理論検討を行った。自己ポンプ法による位相共役波発生に関し必要条件として入射角度(α_1)と散乱光角度(α_2)の関係を解析した。特に波長の結合係数に対する影響に関する知見は結晶材料の物性との関連を考慮する際に重要な結果であると考えられる。

参考文献

- (1) T. Y. Chang and R. W. Hellwarth, Optics Lett. 10,408 (1985)
- (2) Y. Zhu, C. Yang, M. Hui, X. Niu, J. Zhang, and T. Zhou, Appl. Phys. Lett. 64(18),2341(1994)
- (3) K. R. MacDonald and J. Feinberg, J. Opt. Soc. Am. 73(5),548 (1983)
- (4) J. Feinberg, Opt. Lett. 7(10),486(1982)

(平成7年12月8日受理)