

BaTiO₃ 単結晶による位相共役波の発生と不純物効果

多 田 紘 二* ・ 岡 島 武 志*

Generation of phase-conjugate optical wave by a self-pumped BaTiO₃ single crystal and impurity-doping effect

Koji TADA ・ Takeshi OKAJIMA

The phase-conjugate wave is generated by a self-pumped phase conjugator, using a single crystal of pure BaTiO₃ and Ce doped BaTiO₃ for the wave length of 514 nm Ar ion laser.

Remarkable effect of Ce dopants in the reflectivity of the phase-conjugate wave is recognized and theoretically discussed in connection with the crystal electronic properties.

1. 緒言

非線型光学効果を利用したさまざまなオプトエレクトロニクスデバイスは光通信や光情報処理システムの将来の展開において重要な役割を果たすものと考えられる。

非線型光学効果の中でも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と相俟って屈折率分布をもたらすが、いわゆるフォトリフラクティブ効果はこれによって生じる。フォトリフラクティブ効果により入射するレーザ光の位相共役波を発生させることができる。位相共役波は光共振器や光増幅器を始め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への応用が期待されるものである。

BaTiO₃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、さらに特性を向上させるため微量の不純物を添加することが精力的に検討されている。(1) しかしながら不純物効果に関しては電子物性論的には必ずしも明らかにされていないので材料探索の指針が確立されていない。本論文では特にBaTiO₃単結晶へのCe元素の添加効果について主として自己ポンプ法による位相共役波の発生に関し実験的に検討したので報告する。

2. 自己ポンプ法による位相共役波の発生

BaTiO₃単結晶に入射したレーザ光は結晶内部の任意の点で散乱光が発生している。これらの光とその一部が結晶内面で反射した光が干渉しあって局部的に屈折格子を生成する。図1には結晶内部のP及びP'点で各々局部的に屈折格子がある場合であり、各点で4波混合の理論が適用できる。(2) 4波混合においては結合係数 γ の値が発生共役波強度を支配すると考えられる。また γ は入射光4の入射角度 α_1 によって変化する。(3)

* 電気工学科

したがって共役波強度の入射光強度の比率,すなわち反射率も入射角度に依存するはずである.本論文では特に,結晶物性と位相共役波反射率との相関について検討する.

さらに結晶内部の電荷生成や屈折格子の形成は結晶の電子物性に左右されるので単結晶と

して Ce元素の添加されたBaTiO₃ および非添加 BaTiO₃について比較した.

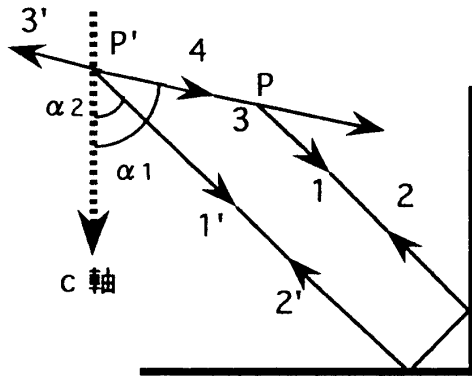


図1 自己ポンプ法による共役波発生

3. 実験方法

図2に実験に使用した光学系の配置を示す. 図中, L1, L2: 集光レンズ, NDF: 濃淡フィルター, PBS: 偏光ビームスプリッター, PL: 偏光子, BS: 約50 %の透過率をの部分反射鏡, D: 光パワー検出器である.

結晶は結晶軸 a 及び c 方向に約 5 mm 直方体で, Ce 元素が約 20~30 ppm 添加された BaTiO₃ 及び非添加 BaTiO₃ であ

る. 入射光源は波長 514 nm, 出力 50 mW の Ar イオンレーザである. 結晶入射端面での光束径は約 1 mm, 光出力は 0.1 mW ~ 1 mW とした. 偏光方向は p 波 (入射面に平行) である. 結晶にある角度で入射した光線は結晶一部は透過し他は結晶内部で反射し 4 波混合条件を満たすループを形成する. その結果入射光と同一光路を辿る位相共役波が発生する. 図2のBSによって検出器へ入射する. 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.

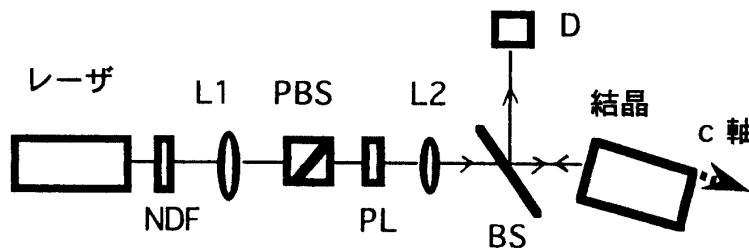


図2 光学系配置

4. 実験結果

共役反射光は入射光が入射後ただちに発生するのではなく生成電荷の結晶内でのドリフトや拡散によって安定状態に至るまで数分から数十分の時間がかかる. 各入射光強度に

対する共役反射光強度を反射率で表した測定結果を図3および図4に示す. 図3は添加元素を含まないBaTiO₃結晶であり, 数十分後に立上り始める. 図4はBaTiO₃:Ce結晶である. 入射光強度に対し変化するが数分で立ち上がる.

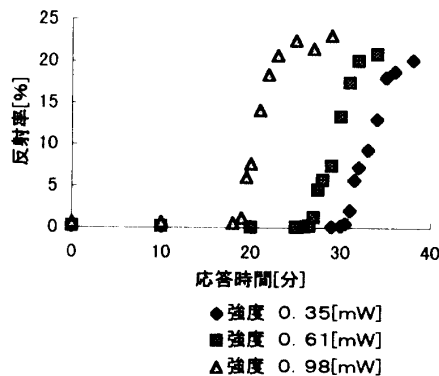


図3 自己ポンプ法における応答時間 (BaTiO₃)

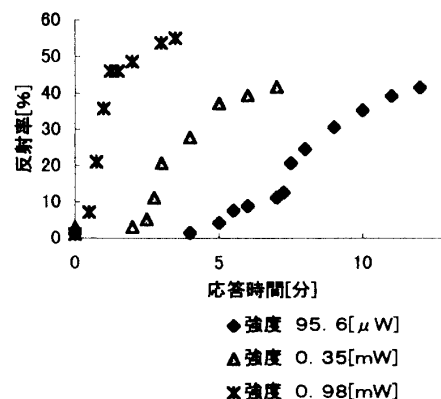


図4 自己ポンプ法における応答時間 (BaTiO₃:Ce)

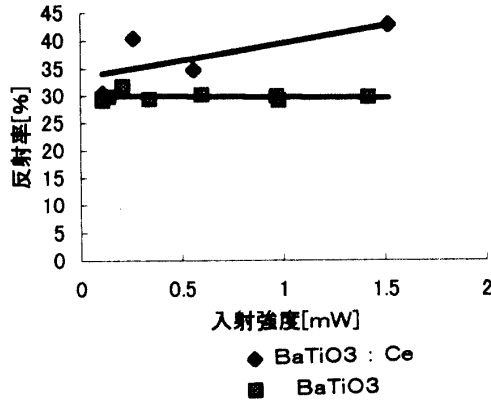


図5 自己ポンプ法における強度依存性

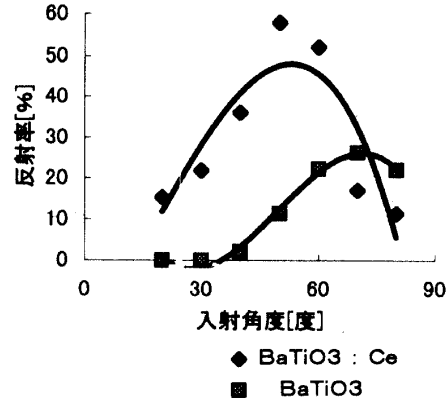


図6 自己ポンプ法における角度依存性

図5に共役波の定常状態(約30分後)での反射率を入射光強度依存性をBaTiO₃およびBaTiO₃:Ce各々について示す. 入射光強度が約1mW以上で結晶の差異が認められる. 入射光強度が1.35mWの時の共役反射光強度の入射光角度依存性について図6に示す. いずれもp偏光である.

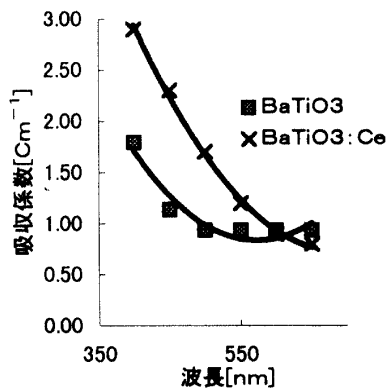


図7 吸収係数の波長特性 (P偏光)

入射角度が50~70度辺りで反射率の極大値が観測された. いずれも定常状態での値である. 結晶による差異は明かに認められCe添加により反射率は極大部分で約3倍増大する. 入射光強度は1.35 mWである.

結晶の差異は光吸収係数に対しても影響が考えられる. 図7は光吸収係数の測定結果を示す. 今回の実験では, Ar イオンレーザは波長 514 nm であり, この波長での吸収係数はBaTiO₃の場合, 0.94 / cm であり, BaTiO₃:Ceは1.70 / cm であった.

5. 検討

5-1. 自己ポンプ法における共役波発生の理論

図1に示す自己ポンプ法における位相共役波発生のモデルにおいてP点での4波混合の理論を適用する.(2) 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合作用しないこと, 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.

$$\begin{aligned} dA_1/dz &= \gamma \alpha A_4/I_0, & dA_2^*/dz &= \gamma \alpha A_3^*/I_0 \\ dA_3/dz &= -\gamma \alpha A_2/I_0, & dA_4^*/dz &= -\gamma \alpha A_1^*/I_0 \\ \alpha &= A_1 A_4^* + A_2^* A_3, & I_0 &= I_1 + I_2 + I_3 + I_4 \quad (I_j = |A_j|^2) \end{aligned} \quad (1)$$

ここで γ は結合係数である。フォトリフラ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(図1 中光4) および前進ポンプ光(図1 中光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。(2)

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

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 $r_{\text{eff}} = [n_0^4 r_{13} \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 + 2n_e^2 n_0^2 r_{42} \cos^2\{(\alpha_1 + \alpha_2)/2\} + n_e^4 r_{33} \sin \alpha_1 \sin \alpha_2] \sin\{(\alpha_1 + \alpha_2)\}$ 。ただし、BaTiO₃ の場合、 $r_{42} = 820 \times 10^{-12}(\text{m/V})$ 、 $r_{13} = 8 \times 10^{-12}(\text{m/V})$ 、 $r_{33} = 23 \times 10^{-12}(\text{m/V})$ 、 $n_0 = 2.41$ 、 $n_e = 2.36$ とし、数値計算に際しては N を 2×10^{22} 個/ m^3 とした。

P' での 4 波混合は上式の基本式で ' を付記することによって得られる。適当な境界条件を与えることによって共役波反射率を導くことができる。P および P' での交差する 2 光波の 2 等分線の方に z 軸をとっているが、各波が混合している領域、すなわち相互作用領域を $z = l_1 \sim l_2$ とする。P' では ' を添付する。また結晶内部での反射による光損失率を L で表す。共役反射率 R は次式で与えられる。

$$R = |A_3(l_1)/A_4^*(l_1)|^2 = -a(r)b(r)/\{4(1-r^2)\tanh^4(\gamma l r/2)\} \quad (3)$$

$$a(r) = r^2 [1 - \tanh^2(\gamma l r/2)], \quad b(r) = [r - 2 \tanh(\gamma l r/2)]^2 - r^2 \tanh^2(\gamma l r/2)$$

γ は結合係数、 $l = l_2 - l_1$ 、 $l' = l_2' - l_1'$ である。

r は次の r および ξ の連立方程式より計算機によって求められる値である。

$$\tanh(\gamma l' l' \xi / 2) = \xi$$

$$[(1+\xi)a(r)/b(r) + (1-\xi)(1-L)][(1+\xi)(1-L)b(r)/a(r)$$

$$+ (1-\xi)] = 4[r - \tanh(\gamma l r/2)]^2 / (1-r^2) \tanh^2(\gamma l r/2)$$

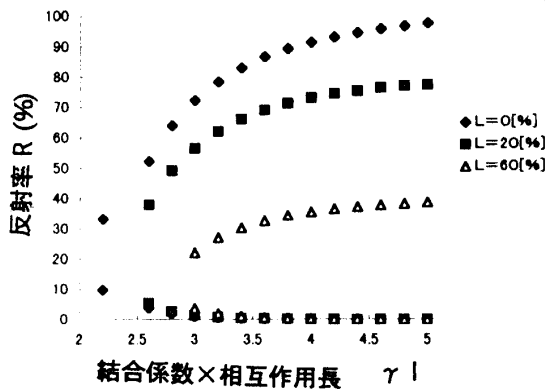


図 8 自己ポンプ法による共役波反射率

図8には計算結果を示す。反射損失 L を 0, 20, 60% とした場合の共役波反射率 R と γl との関係である。簡単のため $l = l'$ と仮定した。図より γl の 2 値関数であるがある値以上で γl の増大に対応し、 R は増大することがわかる。

図9には γ の入射角依存性の理論値を示す。波長が 520 nm、 N (電荷捕獲センタ濃度) を $2 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ の場合である。 α_1 が 45~55 度で極大となる。

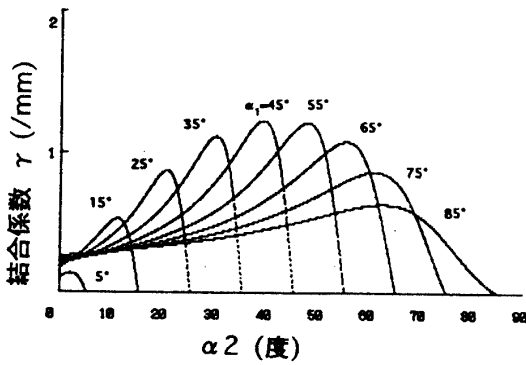


図9 結合係数の角度依存性

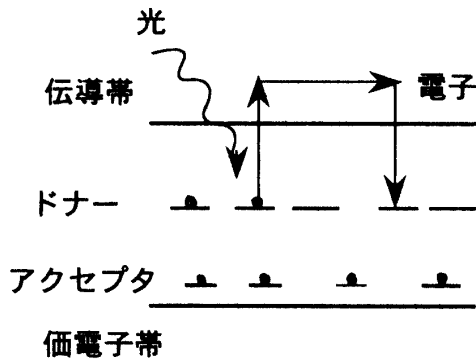


図10 バンドモデル

以上の理論的検討結果から反射率 R は結合係数 γ と相互作用長 l の積に依存し、また γ は入射角に依存すると言える。

実験で得られる共役波反射強度は、特に結晶の比較を行う場合、上記のことに留意する必要がある。

5.2. フォトリフラクティブ効果のバンドモデル
フォトリフラクティブ効果に関しては深い準位のドナ-および比較的浅い準位のアクセプタを含む図10に示すバンド構造で説明できる。(4)

ドナ-濃度を N_D 、そのうちイオン化しているものを N 、アクセプタ濃度を N_A とし、全てホールを放出しイオン化しているとする。光照射部でドナ-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イオン化ドナ-を中性化する。このため未照射部では中性化条件 ($N_A = N$) が破れ負に帯電する。照射部は正に帯電する。この結果局部電界が形成され、屈折率

が変調されるのである。電界の大きさは(2)式中 E で与えられ、電子捕獲センタ-はイオン化ドナ- N である。(2)式から結合係数 γ は電界 E の増大、したがってイオン化ドナ-またはアクセプタ濃度の増加とともに増大することがこのモデルから予想できる。

共役波反射率の照射直後の時間変化に関しては、バンドモデルから過渡的変化が解析できる。(4) 屈折格子の形成時間は次式の時定数 τ で与えられる。

$$\tau = t_0 (E_d + E_\mu) / (E_d + E_q) \quad (4)$$

ここで $t_0 = N_A / (N_D s I_0)$, $E_d = k_B T k_g / q$, $E_q = q N_A (N_D - N_A) / (\epsilon k_g N_D)$, $E_\mu = \gamma_R N_A / (\mu k_g)$, s : 光励起断面積, I_0 : 光強度, γ_R : 電子捕獲係数である。もし $N_D \gg N_A$ ならば $E_q = q N_A / (\epsilon k_g)$ で近似できる。

以上のことから本研究で得られた実験結果に関する検討を行うことができる。

BaTiO₃ 結晶に20~30 ppmの濃度で添加されたCe元素はBaTiO₃のバンド内に不純物準位を形成し、ドナ-およびアクセプタを形成していることが予想できる。これにより、光吸収係数は変化し、Ce添加結晶では波長520 nm近辺で非添加結晶に比べて吸収が大きくなっている。

自己ポンプ法による位相共役波発生の実験的結果から、光波の混合理論における結合係数 γ が得られた。Ce添加結晶はイオン化ドナ-を増大させ、電子捕獲センタ-を増加させる結

果,内部空間電界を大きくする.その結果は結合係数が増大することと強い相関がある.またCe添加結晶は位相共役波発生のための所要時間,すなわち時定数 τ を大幅に短縮している.この結果は中性ドナ- N_D の増大は時定数を減少させることを示す(4)式の結果と一致する.

6. 結言

BaTiO₃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を実施し,次のことを明らかにした. Ce元素の添加効果は位相共役波の発生効率を増大させる. 入射光の結晶軸に対する角度依存性,光吸収係数の実測,屈折格子形成の時定数の測定結果に対応し,4波混合理論およびフォトリフラクティブのバンド理論を解析した結果,添加CeのBaTiO₃結晶電子物性に関する重要な知見が得られた.

7. 謝辞

BaTiO₃結晶およびBaTiO₃:Ce結晶の光吸収測定に際し便宜をはかって頂いた本学電気工学科 内田健治教授に謝意を表する.

参考文献

- (1) T. Y. Chang and R. W. Hellwarth, Optics Lett. **10**, 408 (1985)
- (2) K. R. MacDonald and J. Feinberg, J. Opt. Soc. Am. **73**(5), 548 (1983)
- (3) 多田, 岡島, 福井工大研究紀要, 第26巻(第1部), 51 (1996)
- (4) P. Yeh, "Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics" (John Wiley & Sons, New York, 1993), Chap. 3.

(平成 8 年 12 月 13 日 受理)